

## 明 細 書

### 水素生成装置

#### 技術分野

- [0001] 本発明は、少なくとも炭素及び水素からなる有機化合物を含有する原料と水とを化学反応させて水素を生成し、この水素を燃料電池に供給する水素生成装置に関する。

#### 背景技術

- [0002] 従来から、エネルギーを有効に利用することが可能な分散型の発電装置として、発電効率及び総合効率が高い燃料電池コージェネレーションシステム(以下、単に燃料電池システムという)が注目されている。
- [0003] 燃料電池システムには、その発電部の本体として、燃料電池が配設されている。この燃料電池の多く、例えば、既に実用化されているリン酸型燃料電池(略称、PAFC)や、現在開発が進められている固体高分子型燃料電池(略称、PEFC)は、発電のための燃料として水素を用いる。しかしながら、この水素の供給手段は、現在、インフラストラクチャーとして整備されていない。そのため、燃料電池システムには、通常、発電の際に必要な水素を生成するための水素生成装置が設けられている。この水素生成装置では、メタンガス等の炭化水素系の原料と水とが用いられて、水素を豊富に含む改質ガスが生成される。燃料電池は、この水素生成装置で生成される改質ガスと空気とを用いて、所定の電力を出力するべく発電を行う。
- [0004] 水素生成装置における水素の生成方法としては、水蒸気改質法が一般的に用いられている。この水蒸気改質法では、水蒸気改質反応により改質ガスが生成される。この水蒸気改質反応は、例えば、水素を生成するための原料となる都市ガスと水蒸気とをルテニウム触媒を用いて600℃～800℃程度の高温度条件下で化学反応させることにより水素を主成分とする改質ガスを生成する、種々ある水素生成反応の1つの化学反応である。
- [0005] 従来の水素生成装置の具体的な構成例としては、例えば、多重同心円筒状の構成を有する水素生成装置がある。

- [0006] 図18は、原料と水蒸気とを均一に混合可能な水素生成装置の一例の内部構成を模式的に示す縦断面図である。尚、図18中に示す矢印は、原料や水蒸気等のガスが流れる方向を示している。
- [0007] 図18に示すように、原料と水蒸気とを均一に混合することが可能な水素生成装置300は、多重同心円筒状の構成を備えている。即ち、この水素生成装置300は、水蒸気改質反応を進行させるための高温状態の燃焼ガスを生成する燃焼バーナー16と、水が供給されると共に燃焼バーナー16により加熱されて湿り水蒸気又は水蒸気を生成する加熱器17及び18とを備えている。又、この水素生成装置300は、燃焼バーナー16を中心とした複数の同心円筒19〜28により構成される複数の円環状空間に、燃焼バーナー16によって生成した高温状態の燃焼ガスが通過する燃焼ガス用流路29と、原料と水蒸気との混合ガスを水蒸気改質反応の前に予熱するための予熱層30と、所定の反応温度に加熱されて水蒸気改質反応を進行させる改質触媒層31と、この改質触媒層31において生成した高温状態の改質ガスの温度を低下させるために熱を回収する熱回収層32と、この熱回収層32により冷却された改質ガス中の一酸化炭素の濃度を所定の化学反応により低減するための変成触媒層33と、この変成触媒層33により一酸化炭素の濃度が低減された改質ガスと選択酸化反応用の空気を供給する空気供給部34から取り入れた空気とを混合するための第1の混合層35及び第2の混合層36と、これらの第1の混合層35及び第2の混合層36を通過して空気が混合された改質ガス中の一酸化炭素の濃度を選択酸化反応により更に低減するための第1の選択酸化触媒層37及び第2の選択酸化触媒層38とを、燃焼バーナー16を中心として同心円筒状に備えている。そして、図18に示すように、この水素生成装置300では、予熱層30と熱回収層32と第1の混合層35及び第2の混合層36とが、原料と水蒸気又は空気との混合促進のためのセラミック球が充填された充填体により構成されている(例えば、特許文献1参照)。
- [0008] このように構成された水素生成装置300では、水蒸気改質反応において使用される水は、加熱器17若しくは加熱器18に供給されて少なくともその一部が気化し、加熱器17又は加熱器18から排出された水(温水)は、図18では特に図示しない混合部において原料としての都市ガスと混合された後、同心円筒25と同心円筒26との間

、及び、同心円筒24と同心円筒25との間の各々の空間を移動する間に完全に気化して、都市ガスと混合される。そして、この都市ガスと水蒸気との混合ガスは、予熱層30を通過する際に十分に混合された後に改質触媒層31に供給され、この改質触媒層31が燃焼ガス用流路29を流れる燃焼ガスによって加熱されて進行する水蒸気改質反応に利用される。この水蒸気改質反応によって生成された改質ガスは、その後、熱回収層32を通過して所定の温度にまで冷却された後に変成触媒層33に供給される。そして、この変成触媒層33において進行する変成反応により、改質ガスに含有される一酸化炭素の多くが除去される。この一酸化炭素の多くが除去された改質ガスは、更にその後、少量含まれる一酸化炭素の殆どを除去するために、第1の混合層35において空気供給部34から供給される空気と十分に混合された後、第1の選択酸化触媒層37に供給される。そして、この第1の選択酸化触媒層37において進行する選択酸化反応によって、改質ガスに含有される一酸化炭素の殆どが燃焼により除去される。又、第1の選択酸化触媒層37によって除去し得なかった一酸化炭素を除去するために、第2の混合層36により濃度が均一化された改質ガスが第2の選択酸化触媒層38に供給され、この第2の選択酸化触媒層38において一酸化炭素が更に除去される。一酸化炭素が十分に除去された改質ガスは燃料電池に供給され、この燃料電池における発電のための化学反応に利用される。

[0009] この図18に示す水素生成装置300によれば、同心円筒20と同心円筒21との間にセラミック球により構成される予熱層30が配設されており、これにより予熱層30を通過する流体の流れが乱れるので、都市ガス等の原料と水蒸気とが積極的に混合される。換言すれば、原料と水蒸気との混合ガスの流れが予熱層30を通過する際にセラミック球の影響を受けて三次元的に入り組んだ流れとなるので、原料と水蒸気との混合が好適に促進される。又、この水素生成装置300によれば、変成触媒層33に改質ガスが供給される際、熱回収層32が有する混合作用によって改質ガスの混合状態が向上するので、変成触媒層33における変成反応が好適に行われる。更に、この水素生成装置300によれば、第1の選択酸化触媒層37及び第2の選択酸化触媒層38に対して改質ガスが各々供給される際、第1の混合層35及び第2の混合層36が有する混合作用によって改質ガスの混合状態が向上するので、第1の選択酸化触媒層

37及び第2の選択酸化触媒層38における選択酸化反応が好適に進行する。

[0010] しかしながら、この水素生成装置300では、セラミック球が充填されてなる予熱層30、熱回収層32、第1の混合層35、及び第2の混合層36では、近隣に存在する流体同士の混合性能は比較的良好であるが、比較的離れた位置に存在する流体同士の混合性能は劣っている。具体的に説明すると、例えば、改質反応に用いられる原料及び水蒸気は水素生成装置300の図18の右上部から供給されるため、図18の右側の予熱層30に供給される流体中の原料及び水蒸気の濃度は、図18の左側の予熱層30に供給される流体中の原料及び水蒸気の濃度よりも高い。この場合、予熱層30における流体中の原料及び水蒸気の濃度をその周方向において均一化しようとしても、その流体を予熱層30の内部で予熱層30の鉛直方向における長さよりも遙かに長い円周方向に移動させなければならないので、事実上、予熱層30において流体中の原料及び水蒸気の濃度を均一化することは困難である。そのため、改質触媒層31に供給される原料及び水蒸気の濃度はその触媒層の円周方向において不均一に分布することになり、改質触媒層31における原料及び水蒸気の濃度が低い位置では、改質触媒層31に過剰に加熱される部分が生じて、改質触媒の劣化につながる。又、改質触媒層31における原料及び水蒸気の濃度が高い位置では、過剰に存在する水蒸気により十分に改質触媒層31の温度が上昇せず、水素生成への転化率が減少する。

[0011] 又、第1の混合層35においても、上述した予熱層30の場合と同様、図18に示すP1及びP2の位置から供給される空気の濃度の違いからその周方向において均一化が困難であるため、第1の選択酸化触媒層37に供給される酸素の濃度はその触媒層の円周方向において不均一に分布する。そのため、第1の選択酸化触媒層37における酸素の濃度が低い位置では、改質ガスに含まれる一酸化炭素を十分に除去することができない。一方、第1の選択酸化触媒層37における酸素の濃度が高い位置では、改質ガスに含まれる一酸化炭素を酸化除去してもなお余剰に存在する酸素によって生成した水素までもが消費されてしまい、水素生成効率を低下させる原因となっていた。

[0012] そこで、上述のように改質触媒層31に供給される原料及び水蒸気の濃度に大きな

違いが生じることを抑制するために、円周方向において離れた位置に存在する流体同士の混合性能を高めることが可能な水素生成装置が提案されている。

[0013] 図19は、円周方向において離れた位置に存在する流体同士の混合性能を高めることが可能な水素生成装置の一例の内部構成を模式的に示す縦断図である。尚、図19中に示す矢印は、原料や水蒸気等のガスが流れる方向を示している。

[0014] 図19に示すように、この水素生成装置400は、都市ガス供給用配管接続部1と、水供給用配管接続部2と、燃焼ガス排気口13と、出口配管15とを備えている。又、この水素生成装置400は、燃焼ガス用流路4〜6と、都市ガス供給用配管接続部1及び水供給用配管接続部2から供給される都市ガス及び水が流下する流下流路8と、この流下流路8を流下する過程において生成した水蒸気と都市ガスとの混合ガスが上昇する上昇流路9と、水蒸気改質反応により生成した改質ガスを水素生成装置400の内部で流通させる改質ガス用流路11とを、燃焼バーナー3を中心として同心円筒状に備えている。尚、この水素生成装置400では、流下流路8と上昇流路9とにより蒸発器10が構成されていると共に、改質ガス用流路11の内部の所定領域に水蒸気改質反応を進行させるための改質触媒層12が設けられている。そして、この図19に示す水素生成装置400では、上昇流路9と改質ガス用流路11とが2つの円盤状の横壁39及び横壁40により挟まれて構成される円盤形状の空間41と触媒配管42とによって接続されている。そして、図19に示すように、この水素生成装置400では、少なくとも円盤形状の空間41に、その直径が空間41の高さの1/3程度の球状のアルミナ粒子43が、原料と水蒸気との混合促進のために多数充填されている。

[0015] このように構成された水素生成装置400では、都市ガス供給用配管接続部1及び水供給用配管接続部2から流下流路8に都市ガス及び水が供給されると、蒸発器10において都市ガスと水蒸気との混合ガスが生成される。そして、この蒸発器10の内部で円周方向に広がるようにして存在する都市ガスと水蒸気との混合ガスは、その後、空間41及び触媒配管42を通過して、改質触媒が充填された改質触媒層12に供給される。すると、この改質触媒層12では、燃焼ガス用流路4を流れる燃焼ガスによって改質触媒が高温に加熱されて水蒸気改質反応が進行して、これにより混合ガスから水素と二酸化炭素と一酸化炭素とを含む改質ガスが生成される。ここで、この水素

生成装置400では、図18に示す水素生成装置300の場合と同様、少なくとも空間41に球状のアルミナ粒子43が充填されており、これにより円盤形状の空間41を流れる流体の流れが乱れるので、都市ガス等の原料と水蒸気とが積極的に混合される。換言すれば、原料と水蒸気との混合ガスの流れが円盤形状の空間41を通過する際にアルミナ粒子43の影響を受けて三次元的に入り組んだ流れとなるので、これにより原料と水蒸気との混合状態が図18に示す水素生成装置300の場合と同様にして改善される。

- [0016] 又、この水素生成装置400では、上昇流路9と改質ガス用流路11とが2つの円盤状の横壁39及び横壁40により挟まれて構成される円盤形状の空間41と触媒配管42とによって接続されているので、蒸発器10を通過した都市ガスと水蒸気との混合ガスは、蒸発器10の全周領域から円盤形状の空間41をアルミナ粒子43の影響を受けながら乱流状態で通過して触媒配管42に集約された後に、改質触媒層12に供給される。そのため、都市ガス供給用配管接続部1から供給される都市ガスが流下流路8と上昇流路9との内部を都市ガス供給用配管接続部1側に片寄って流れ、図19に示す空間41の右側において混合ガス中の都市ガスの濃度が高く、逆に、図19に示す空間41の左側において混合ガス中の都市ガスの濃度が低くなる、即ち、円周方向において空間的な濃度分布が発生する場合であっても、改質触媒層12内の円周方向における例えば都市ガスと水蒸気との混合状態は十分に平均化される。つまり、図19に示す水素生成装置400によれば、都市ガスと水蒸気との混合ガス等の流体の混合状態を改善することが可能になると共に、円周方向において離れた位置に存在する流体同士の混合状態を改善することが可能になる。

特許文献1:国際公開WO2000/063114号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

- [0017] しかしながら、上述した水素生成装置400では、混合ガスにおける都市ガスと水蒸気との混合状態を改善するためのアルミナ粒子43が少なくとも空間41に数多く充填されているため、水素生成装置400の重量が増加するという問題があった。そして、この問題に起因して、水素生成装置400を備える燃料電池システムの軽量化が阻害

されるという問題が生じていた。

[0018] 又、この水素生成装置400では、アルミナ粒子43が数多く用いられているため、水素生成装置400の熱容量が増大している。そのため、負荷の消費電力の増加に応じて燃料電池に供給する改質ガスの供給量を増加させる必要がある場合、水素生成装置400の内部の温度分布が最適な温度分布に変化するまでに長い時間を要するので、応答性が劣るという問題があった。この問題は、特に、水素生成装置400を起動する際において重要な問題となった。

[0019] 具体的に説明すると、水素生成装置400の起動時、アルミナ粒子43の温度は室温若しくは室温に近い温度であるが、その後、燃焼バーナー3により生成される高温状態の燃焼ガスによって加熱されることにより、その温度は徐々に上昇する。この場合、全てのアルミナ粒子43の温度を例えば室温から200℃にまで上昇させるのに必要な熱量は、アルミナ粒子43の合計重量を約1kgと仮定し、かつその比熱を約0.8kJ/kg・℃と仮定すると、約140kJとなる。一方、都市ガスを原料とする水素生成装置400では、起動直後では都市ガスを燃焼することによりアルミナ粒子43を加熱するため、都市ガスの低位発熱量を約42kJ/NLMと仮定すると、上述した約140kJの熱量を賄うためには、約3.3NLMの都市ガスが必要となる。この場合、アルミナ粒子43の加熱を約1.5NLM/分の都市ガスの燃焼によって行うと仮定すると、全てのアルミナ粒子43の温度を室温から200℃にまで上昇させるためには、約2分間の時間を要することになる。そして、実際には、水素生成装置400において放熱損失が生じるため、2分以上の起動時間の遅れが生じる。

[0020] この際、アルミナ粒子43の温度が十分に上昇する前に水素生成装置400に原料及び水蒸気を供給すると、その供給された水蒸気がアルミナ粒子43によって冷却されて水として凝縮するので、改質触媒層12には水蒸気の量が不足した原料が供給されることになる。この場合、水蒸気の量が少ない条件(具体的には、改質触媒層12に供給される水蒸気の実モル量Sと原料に含まれる炭素の実モル量Cとの比であるS/C比が2.7〜3.2程度の範囲を下回る条件)において水蒸気改質反応を進行させると、改質触媒の表面に原料中の炭素が析出して、改質触媒の触媒活性が低下する。そして、このような運転条件を継続させると、次第に改質触媒層全体の触媒性能が劣

化するので、水素生成装置400を長期的に利用することが不可能となる。そのため、実際には、アルミナ粒子43の温度が十分に上昇した後に、水素生成装置400に原料及び水蒸気を供給する必要があった。つまり、上述した水素生成装置400では、起動から電力の出力開始までの待機時間が長いという問題があった。

[0021] 又、図18に示す水素生成装置300についても、予熱層30又は第1の混合層35等はセラミック球により構成されており、従って、上記水素生成装置400と同様の問題を有している。

[0022] 本発明はこのような事情に鑑みてなされてものであり、軽量でありかつ熱容量が小さい高性能のガス混合器を備えた、水素生成効率及び応答性に優れる水素生成装置を提供することを目的とする。

#### 課題を解決するための手段

[0023] 上記課題を解決するために、本発明に係る水素生成装置は、2以上の成分を含有する混合ガスが流通する混合ガス流路と、各々の始端が前記混合ガス流路から分岐し各々の終端が互いに合流する第1の流路及び第2の流路と、前記第1の流路に設けられ該第1の流路を流れる混合ガスを第1の方向に旋回させる第1の旋回手段と、前記第2の流路に設けられ該第2の流路を流れる混合ガスを第1の方向と反対の第2の方向に旋回させる第2の旋回手段と、前記合流した第1の流路及び第2の流路の終端から流出する前記混合ガスを化学反応させて水素を生成する水素生成部とを備えている。

[0024] かかる構成とすると、改質触媒層又は選択酸化触媒層に供給される混合ガスの混合状態を改善することができると共に、改質触媒層又は選択酸化触媒層に供給される混合ガスにおける都市ガス等の構成成分の濃度を供給位置に関係無く均一にすることができるので、水素生成効率が優れた水素生成装置を提供することが可能になる。

[0025] この場合、前記第1の流路及び前記第2の流路は、前記混合ガスが、前記第1の流路の終端及び第2の流路の終端からの混合ガスの流出方向に垂直な平面内を流れながら、それぞれ、前記第1の方向の旋回及び前記第2の方向の旋回を行うように形成されている。



- [0026] かかる構成とすると、平板状のガス混合器を構成することができるので、水素生成装置を薄型化することが可能になる。
- [0027] この場合、前記第1の流路及び前記第2の流路が、それぞれ、互いに一致する中心軸を有し、外周面が開放され、かつ中心に円形の開口を有する中空状に形成され、前記外周面が始端たる入口を構成するとともに前記開口が終端たる出口を構成しており、前記第1の旋回手段が前記第1の流路の内部空間を前記中心軸に沿う方向に仕切りかつ該内部空間の外周から内方へ終端が始端に対して半径方向から前記第1の方向にずれるように延びる複数の隔壁で構成され、前記第2の旋回手段が前記第2の流路の内部空間を前記中心軸に沿う方向に仕切りかつ該内部空間の外周から内方へ終端が始端に対して半径方向から前記第2の方向にずれるように延びる複数の隔壁で構成されている。
- [0028] かかる構成とすると、ガス混合性能が優れた平板状のガス混合器を好適に構成することが可能になる。
- [0029] この場合、前記隔壁の始端に対する終端のずれが、前記中心軸の周りの回転角度において、 $45^{\circ}$  ～  $90^{\circ}$  の範囲の回転角度である。
- [0030] かかる構成とすると、混合ガスの混合状態を好適に改善することが可能になる。
- [0031] この場合、前記第1の流路及び前記第2の流路と、前記第1の旋回手段及び前記第2の旋回手段とが、前記中心軸に沿って、それぞれ複数形成されている。
- [0032] かかる構成とすると、混合ガスの混合状態を更に好適に改善することが可能になる。
- [0033] 又、上記の場合、前記第1の流路及び前記第2の流路は、前記混合ガスが、前記第1の流路の終端及び第2の流路の終端からの混合ガスの流出方向に平行な筒状の面内を流れながら、それぞれ、前記第1の方向の旋回及び前記第2の方向の旋回を行うように形成されている。
- [0034] かかる構成とすると、円筒状のガス混合器を構成することができるので、水素生成装置を小型化することが可能になる。
- [0035] この場合、前記第1の流路及び前記第2の流路が、それぞれ、前記中心軸を中心軸として共有しかつ環状の断面を有する筒状に形成され、一方の側の各々の端面が

始端たる入口を構成するとともに他方の側の各々の端面が終端たる出口を構成しており、前記第1の旋回手段が前記第1の流路の筒状の内部空間を前記第1の方向に旋回するようにして螺旋状に仕切る複数の隔壁で構成され、前記第2の旋回手段が前記第1の流路の筒状の内部空間を前記第2の方向に旋回するようにして螺旋状に仕切る複数の隔壁で構成されている。

- [0036] かかる構成とすると、ガス混合性能が優れた筒状のガス混合器を好適に構成することが可能になる。
- [0037] この場合、前記隔壁の始端から終端までの旋回角度が $45^{\circ}$  ～  $90^{\circ}$  の範囲の旋回角度である。
- [0038] かかる構成とすると、混合ガスの混合状態を好適に改善することが可能になる。
- [0039] この場合、前記隔壁で区画された旋回流路の出口が一部閉鎖されている。
- [0040] かかる構成とすると、混合ガスの混合状態を更に好適に改善することが可能になる。
- [0041] この場合、前記第1の流路と前記第2の流路とが円筒状の分割隔壁で隔てられるようにして形成され、前記第1の流路及び前記第2の流路のいずれかの前旋回流路の出口が閉鎖され、前記分割隔壁の該閉鎖された出口の近傍部分に開口が形成されている。
- [0042] かかる構成とすると、混合ガスの混合状態を、より一層好適に改善することが可能になる。
- [0043] この場合、前記第1の流路及び前記第2の流路が、前記中心軸に沿って、それぞれ、複数形成され、前記混合ガスの流れにおいて上流側に位置する前記第1の流路及び前記第2の流路の終端が下流側に位置する前記第1の流路及び前記第2の流路の始端に接続されている。
- [0044] かかる構成とすると、混合ガスの混合状態を、更により一層好適に改善することが可能になる。
- [0045] 又、上記の場合、前記混合ガスが少なくとも炭素及び水素を有する有機化合物と水とが混合した混合ガスであり、前記化学反応が前記有機化合物と水とが混合した混合ガスから水素を生成する水蒸気改質反応であり、前記水素生成部が前記水蒸

気改質反応により水素を豊富に含有する改質ガスを生成する改質反応部であって、前記第1の旋回手段及び前記第2の旋回手段が前記改質反応部の上流に配設され、前記合流した第1の流路及び第2の流路の終端から流出する前記混合ガスが前記改質反応部に供給されて水素を生成する。

[0046] かかる構成とすると、改質反応部に供給される混合ガスの混合状態が改善されるので、改質反応部における改質反応を好適に進行させることが可能になる。

[0047] 又、上記の場合、前記混合ガスが前記改質ガスと酸素とが混合した混合ガスであり、酸素を用いて一酸化炭素を二酸化炭素に変換する選択酸化反応により前記改質ガス中の一酸化炭素を低減する選択酸化反応部を前記水素生成部に代えて備え、前記第1の旋回手段及び前記第2の旋回手段が前記選択酸化反応部の上流に配設され、前記合流した第1の流路及び第2の流路の終端から流出する前記混合ガスが前記選択酸化反応部に供給されて前記改質ガス中の一酸化炭素を低減する。

[0048] かかる構成とすると、選択酸化反応部に供給される混合ガスの混合状態が改善されるので、選択酸化反応部における選択酸化反応を好適に進行させることが可能になる。

### 発明の効果

[0049] 本発明は、以上に説明した解決手段のように実施され、軽量でありかつ熱容量が小さい高性能のガス混合器を備えた、水素生成効率及び応答性に優れる水素生成装置を提供することが可能になる。

[0050] 本発明によれば、改質触媒層に供給する原料と水蒸気との混合ガス等の流体における時間的及び空間的な濃度の不均一性を解消することが可能である。そして、その結果、改質ガスの濃度の時間的及び空間的な均一性を確保することができるので、改質触媒層やその下流側に配設される変成反応器等の一酸化炭素除去触媒層を有効に使用することが可能となり、各触媒量の低減や水素生成装置の小型化に大きく貢献することが可能になる。

### 図面の簡単な説明

[0051] [図1]図1は、本発明の実施の形態1に係る水素生成装置の内部構成を模式的に示す縦断図である。

[図2]図2は、本発明の実施の形態1に係るガス混合器の内部構成を模式的に示す構成図であって、図2(a)はガス混合器の平面図であり、図2(b)はガス混合器の断面図である。

[図3]図3は、分割隔壁によりその上側に分割された混合ガスの流れを模式的に示す解説図である。

[図4]図4は、分割隔壁によりその下側に分割された混合ガスの流れを模式的に示す解説図である。

[図5]図5は、本発明の実施の形態1に係る他のガス混合器の内部構成を模式的に示す構成図であって、図5(a)はガス混合器の平面図であり、図5(b)はガス混合器の断面図である。

[図6]図6は、分割隔壁の片面に8枚の流路規定部材を配設した場合におけるガス混合器の構成を例示する平面図である。

[図7]図7は、本発明の実施の形態2に係る水素生成装置の内部構成を模式的に示す縦断面図である。

[図8]図8は、本発明の実施の形態2に係るガス混合器の内部構成を模式的に示す縦断面図である。

[図9]図9は、ガス混合器における改質ガスの流れを模式的に示す解説図であって、図9(a)は混合用同心円筒によりその内側に分割された混合ガスの流れを模式的に示す解説図であり、図9(b)は混合用同心円筒によりその外側に分割された混合ガスの流れを模式的に示す解説図である。

[図10]図10は、図9に示す本実施の形態に係るガス混合器の動作を更に分かり易く説明するための解説図である。

[図11]図11は、本発明の実施の形態2に係る他のガス混合器の内部構成を模式的に示す縦断面図である。

[図12]図12は、本発明の実施の形態2に係る更に他のガス混合器の内部構成を模式的に示す縦断面図である。

[図13]図13は、本実施の形態に係るガス混合器における第1の流体(例えば、原料)と第2の流体(例えば、水蒸気)との混合ガスの旋回角度と、ガス混合器を通過した混

合ガスを用いた場合の改質触媒層における改質反応転化率との関係を模式的に示す相関図である。

[図14]図14は、本発明の実施の形態3に係るガス混合器の内部構成を模式的に示す構成図であって、図14(a)はガス混合器の上面図であり、図14(b)はガス混合器の側面図である。

[図15]図15は、本発明の実施の形態4に係るガス混合器の内部構成を模式的に示す構成図であって、図15(a)はガス混合器の上面図であり、図15(b)はガス混合器の側面図である。

[図16]図16は、本発明の実施の形態2〜4に係るガス混合器を直列に集合した第1のガス混合器集合体の内部構成を模式的に示す構成図である。

[図17]図17は、本発明の実施の形態2〜4に係るガス混合器を直列に集合した第2のガス混合器集合体の内部構成を模式的に示す構成図である。

[図18]図18は、原料と水蒸気とを均一に混合可能な水素生成装置の一例の内部構成を模式的に示す縦断図である。

[図19]図19は、円周方向において離れた位置に存在する流体同士の混合性能を高めることが可能な水素生成装置の一例の内部構成を模式的に示す縦断図である。

## 符号の説明

- [0052]
- 1 都市ガス供給用配管接続部
  - 2 水供給用配管接続部
  - 3 燃焼バーナー
  - 4〜6 燃焼ガス用流路
  - 8 流下流路
  - 9 上昇流路
  - 10 蒸発器
  - 11 改質ガス用流路
  - 12 改質触媒層
  - 13 燃焼ガス排気口
  - 15 出口配管

- 16 燃焼バーナー
- 17, 18 加熱器
- 19〜28 同心円筒
- 29 燃焼ガス用流路
- 30 予熱層
- 31 改質触媒層
- 32 熱回収層
- 33 変成触媒層
- 34 空気供給部
- 35 第1の混合層
- 36 第2の混合層
- 37 第1の選択酸化触媒層
- 38 第2の選択酸化触媒層
- 39〜40 横壁
- 41 空間
- 42 触媒配管
- 43 アルミナ粒子
- 44 端部
- 45a〜45d 流路規定部材
- 46a〜46d 流路規定部材
- 47〜49 混合ガス
- 50 分割隔壁
- 51 連通孔
- 52 端部
- 53a〜53d 流路規定部材
- 54a〜54d 流路規定部材
- 55, 56 混合ガス
- 57 仕切り板

58 分割隔壁

59a～59h 流路規定部材

60a～60h 流路規定部材

61 混合用同心円筒

62a～62d 内側流路規定部材

63a～63d 外側流路規定部材

64～66 改質ガス

67a～67h 内側流路規定部材

68a～68h 外側流路規定部材

69, 70 出口部

71 邪魔板

72, 73 開口部

74 邪魔板

75 開口部

76 混合用同心円筒

77ハウジング

101 ガス混合器

101' ガス混合器

102, 103 ガス混合器

201, 202 ガス混合器

203～208 ガス混合器

100～400 水素生成装置

A 第1の所定位置

B 第2の所定位置

C 第3の所定位置

D 第4の所定位置

E 第5の所定位置

F 第6の所定位置

G 第7の所定位置

H 第8の所定位置

c 中心軸

### 発明を実施するための最良の形態

[0053] 以下、本発明を実施するための最良の形態について、図面を参照しながら詳細に説明する。

[0054] (実施の形態1)

本発明の実施の形態1では、供給される水を蒸発させかつ原料と混合させて混合ガスを生成する蒸発器と、改質ガスを生成するための水蒸気改質反応を進行させる反応部とを円盤形状の空間によって接続し、この円盤形状の空間にガス混合器を配設することにより混合ガスの混合状態を水平方向において改善する形態について説明する。

[0055] 先ず、本発明の実施の形態1に係る水素生成装置100の基本的な構成及び動作について、図1を参照しながら説明する。

[0056] 図1は、本発明の実施の形態1に係る水素生成装置100の内部構成を模式的に示す縦断面図である。尚、図1では、改質ガスに含まれる一酸化炭素を除去するための変成反応器や選択酸化反応器、及び燃料電池本体の記載は省略している。又、図1中に示す矢印は、原料や水蒸気等のガスが流れる方向を示している。

[0057] 図1に示すように、本実施の形態に係る水素生成装置100は、上端及び下端が閉鎖された円筒状のハウジング77を有している。このハウジング77の内部は円筒状の縦壁と円板状の横壁とで区画されて、以下に述べる各種の流路等が形成されている。このようなハウジング77を備える水素生成装置100は、外部のインフラストラクチャーから水素生成装置100に都市ガスを供給するための都市ガス供給用配管接続部1と、水道から水素生成装置100に水を供給するための水供給用配管接続部2と、水蒸気改質反応を進行させるための高温状態の燃焼ガスを生成する燃焼バーナー3とを備えている。

[0058] 又、この水素生成装置100は、燃焼バーナー3によって生成した高温状態の燃焼ガスを水素生成装置100の内部で流通させる燃焼ガス用流路4-6と、都市ガス供



給用配管接続部1及び水供給用配管接続部2から供給される都市ガス及び水が流下する流下流路8と、この流下流路8を流下する過程において生成した水蒸気と都市ガスとの混合ガスが上昇する上昇流路9と、水蒸気改質反応により生成した改質ガスを水素生成装置100の内部で流通させる改質ガス用流路11とを、水素生成装置100の中心軸Cに対して同心円筒状に備えている。ここで、本実施の形態に係る水素生成装置100では、流下流路8と上昇流路9とにより蒸発器10が構成されており、この蒸発器10によって水蒸気の生成と都市ガスとの混合が行われる。又、改質ガス用流路11の内部の所定領域には、水蒸気改質反応を進行させるための改質触媒層12が形成されている。又、この水素生成装置100は、燃焼ガス用流路4〜6を通過した燃焼ガスを水素生成装置100の外部へ放出するための燃焼ガス排気口13と、改質ガス用流路11を通過した改質ガスを水素生成装置100の外部へ排出するための出口配管15とを備えている。

[0059] そして、図1に示すように、本実施の形態に係る水素生成装置100では、上昇流路9の端部44と改質ガス用流路11に混合ガスを導入する触媒配管42とが、2つの円盤状の横壁39及び横壁40により挟まれて構成される円盤形状の空間41によって接続されている。ここで、横壁40の中央部には触媒配管42が継合可能な直径の貫通孔が形成されており、この貫通孔に触媒配管42の一端が接続されている。又、図1に示すように、この水素生成装置100では、上述した円盤形状の空間41に、上昇流路9を通過した原料と水蒸気との混合ガスの混合状態を改善するための本発明を特徴付けるガス混合器101が配設されている。このガス混合器101の構成については、後に詳細に説明する。

[0060] このように構成された本実施の形態に係る水素生成装置100では、都市ガス供給用配管接続部1及び水供給用配管接続部2から流下流路8に都市ガス等の原料及び水が供給されると、その流下流路8において水が加熱されて水蒸気が生成し、その水蒸気と原料とが徐々に混合しながら上昇流路9を通過し、その後、上昇流路9の端部44から混合ガスとして排出される。つまり、蒸発器10において、原料と水蒸気との混合ガスが生成される。そして、蒸発器10において生成された混合ガスは、その後、ガス混合器101が配設されている空間41に供給される。そして、このガス混合器

101において、混合ガス中の原料と水蒸気とが十分に混合されると共に、上昇流路9においてその円周方向に濃度分布を有して広がっている混合ガスが集約されて均一に混合される。このガス混合器101による混合ガスの混合状態の改善作用については、後に詳細に説明する。

[0061] ガス混合器101を通過した混合ガスは、その後、触媒配管42を通過して、改質触媒が充填された改質触媒層12を備える改質ガス用流路11に供給される。すると、この改質触媒層12では、燃焼ガス用流路4を流れる燃焼ガスによって改質触媒層12が高温に加熱されて水蒸気改質反応が進行して、これにより混合ガスから水素と二酸化炭素と一酸化炭素とを含む改質ガスが生成される。その後、この改質ガスは、改質ガス用流路11を更に通過して、出口配管15から改質ガス中の一酸化炭素濃度を低減するための変成反応器へと供給される。尚、燃焼ガス用流路4を通過した燃焼ガスは、燃焼ガス用流路5ー6を通過した後、燃焼ガス排気口13を通過して水素生成装置100の外部に放出される。

[0062] 次に、本発明の実施の形態1に係るガス混合器101の構成について、図面を参照しながら詳細に説明する。

[0063] 図2は、本発明の実施の形態1に係るガス混合器101の内部構成を模式的に示す構成図であって、図2(a)はガス混合器101の平面図であり、図2(b)はガス混合器101の断面図である。尚、図2(a)では、ガス混合器101における後述する上側の流路規定部材45aー45dを実線により示しており、下側の流路規定部材46aー46dを破線により示している。

[0064] 図2(a)及び図2(b)に示すように、本実施の形態に係るガス混合器101は、図1に示す上昇流路9から上昇する混合ガス47を混合ガス48及び混合ガス49の如く上下に2分割する円盤状の分割隔壁50を有している。この分割隔壁50の中央部には、触媒配管42の直径と略同一径の直径を有する連通孔51が設けられている。そして、この分割隔壁50の両面における連通孔51の外周部と分割隔壁50の外周部との間に渡るようにして、平面視において渦巻き形状を示しかつ側面視において帯形状を示す流路規定部材45aー45d及び46aー46dが配設されている。

[0065] 具体的に説明すると、図2(a)に示すように、分割隔壁50の上側には、各々が所定

の渦巻き形状を有する4枚の流路規定部材45a～45dが等間隔で配設されている。これらの流路規定部材45a～45dは、混合ガス48が流れる方向を左回りに旋回させることが可能な渦巻き形状を有している。又、図2(a)に示すように、分割隔壁50の下側には、各々が所定の渦巻き形状を有する4枚の流路規定部材46a～46dが等間隔で配設されている。これらの流路規定部材46a～46dは、混合ガス49が流れる方向を右回りに旋回させることが可能な渦巻き形状を有している。ここで、図2(a)に示すように、流路規定部材45a～45dの各々は、その長手方向における分割隔壁50の外周部側の端部が45° 毎の間隔で位置決めされる第1の所定位置A～第4の所定位置Dに配置され、その長手方向における分割隔壁50の内周部側(連通孔51の外周部側)の端部が第1の所定位置A～第4の所定位置Dに対して左回りに45° 移動した第5の所定位置E～第8の所定位置Hに配置されるようにして、分割隔壁50の表面に配設されている。一方、図2(a)に示すように、流路規定部材46a～46dの各々は、その長手方向における分割隔壁50の外周部側の端部が上述した第1の所定位置A～第4の所定位置Dに配置され、その長手方向における分割隔壁50の内周部側(連通孔51の外周部側)の端部が第1の所定位置A～第4の所定位置Dに対して右回りに45° 移動した第7の所定位置G、第6の所定位置F、第5の所定位置E、第8の所定位置Hに配置されるようにして、分割隔壁50の表面に配設されている。つまり、本実施の形態に係るガス混合器101では、流路規定部材45a～45dと流路規定部材46a～46dとは、図2(a)に示す平面図においては混合ガス48と混合ガス49とを互いに逆方向に旋回させるように、又、分割隔壁50の各々の面から見た場合には混合ガス48と混合ガス49とを同方向に旋回させるように、各々渦巻き状に配設されている。そして、このように分割隔壁50及び流路規定部材45a～45d及び流路規定部材46a～46dから構成されるガス混合器101が、上昇流路9と触媒配管42とを接続する円盤形状の空間41に、ガス混合器101の連通孔51と触媒配管23とが中心軸Cの方向において略一致するようにして、所定の固定手段により配設及び固定されている。尚、図2(a)及び図2(b)に示すように、ガス混合器101における所定の位置には、改質触媒層12において生成された改質ガスを水素生成装置100の外部に排出するための出口配管15が貫通している。又、上述した流路規定部材45a～45d

及び流路規定部材46a〜46dの形状は、各流路に流れる混合ガスの流量を等しくするために、各々同一の形状を有していることが好ましい。

[0066] 次に、本発明の実施の形態1に係るガス混合器101による混合ガスの混合状態の改善作用について、図面を参照しながら詳細に説明する。

[0067] 図3は、分割隔壁50によりその上側に分割された混合ガス48の流れを模式的に示す解説図である。尚、図3は、図2(a)に示す平面図と同一方向から見た場合の平面図を示している。又、図3では、分割隔壁50の上側に4方向から流入する混合ガス48の流れを各々異なった種類のハッチングを有する矢印により便宜的に示している。

[0068] 又、図4は、分割隔壁50によりその下側に分割された混合ガス49の流れを模式的に示す解説図である。尚、図4も、図2(a)に示す平面図と同一方向から一部を透視して見た場合の平面図を示している。又、図4でも、分割隔壁50の下側に4方向から流入する混合ガス49の流れを各々異なった種類のハッチングを有する矢印により便宜的に示している。

[0069] 図3に示すように、例えば白矢印で示した図3における右側から流入した混合ガス48aは、流路規定部材45a及び流路規定部材45dによってその流路が左旋回するように変更され、図3における上側から連通孔51へと流れ込む。又、他の矢印で示した図3における上側から流入した混合ガス48bは、流路規定部材45b及び流路規定部材45aによってその流路が左旋回するように変更され、図3における左側から連通孔51に流れ込む。又、他の矢印で示した図3における左側から流入した混合ガス48cは、流路規定部材45c及び流路規定部材45bによってその流路が左旋回するように変更され、図3における下側から連通孔51に流れ込む。又、他の矢印で示した図3における下側から流入した混合ガス48dは、流路規定部材45d及び流路規定部材45cによってその流路が左旋回するように変更され、図3における右側から連通孔51へと流れ込む。このように、流路規定部材45a〜45dは、分割隔壁50の上側に流入した混合ガス48a〜混合ガス48dの流れの向きを、左へ90°回転させて連通孔51へ送り込む作用を有する。

[0070] 一方、図4に示すように、例えば白矢印で示した図4における右側から流入した混合ガス49aは、流路規定部材46a及び流路規定部材46dによってその流路が右旋

回するように変更され、図4における下側から連通孔51へと流れ込む。又、他の矢印で示した図4における上側から流入した混合ガス49bは、流路規定部材46b及び流路規定部材46aによってその流路が右旋回するように変更され、図4における右側から連通孔51に流れ込む。又、他の矢印で示した図4における左側から流入した混合ガス49cは、流路規定部材46c及び流路規定部材46bによってその流路が右旋回するように変更され、図4における上側から連通孔51に流れ込む。又、他の矢印で示した図4における下側から流入した混合ガス49dは、流路規定部材46d及び流路規定部材46cによってその流路が右旋回するように変更され、図4における左側から連通孔51へと流れ込む。このように、流路規定部材46a〜46dは、分割隔壁50の下側に流入した混合ガス49a〜混合ガス49dの流れの向きを、右へ90°回転させて連通孔51へ送り込む作用を有する。

- [0071] 以上の結果、本実施の形態に係るガス混合器101によれば、連通孔51の上側からは分割隔壁50の右側から流入した混合ガス48の半量の混合ガス48aと左側から流入した混合ガス49の半量の混合ガス49cとが流入し、同様にして、連通孔51の下側からは分割隔壁50の右側から流入した混合ガス49の半量の混合ガス49aと左側から流入した混合ガス48の半量の混合ガス48cとが流入する。又、連通孔51の右側からは分割隔壁50の下側から流入した混合ガス48の半量の混合ガス48dと上側から流入した混合ガス49の半量の混合ガス49bとが流入し、同様にして、連通孔51の左側からは分割隔壁50の上側から流入した混合ガス48の半量の混合ガス48bと下側から流入した混合ガス49の半量の混合ガス49dとが流入する。そのため、例えば、分割隔壁50に対して右側から都市ガスの濃度の高い混合ガスが供給され、又、左側から水蒸気の濃度の高い混合ガスが供給された場合のように、混合ガスを構成する成分の濃度が空間的に著しく偏って分布している場合であっても、連通孔51の上下からは各々が半分ずつの量で供給されるので、空間的な濃度分布の偏りを均一化することができる。換言すれば、都市ガスの濃度の高い混合ガスと水蒸気の濃度の高い混合ガスとの接触する接触場が多くなるので、空間的な濃度分布の偏りを均一化することが可能になる。その結果、触媒配管42を通過して改質触媒層12の端部52(図1参照)に供給される混合ガスの濃度の偏りを解消することが可能となり、これにより、

改質ガスの濃度を空間的に均一化することが可能になる。又、上述したガス混合器101による混合ガスの混合状態の改善作用により、混合ガスにおける都市ガスと水蒸気との混合状態を改善することが可能になる。更に、上述した分割隔壁50及び流路規定部材45a〜45d及び流路規定部材46a〜46dからなる構成を採用することにより、ガス混合器101の熱容量を低減することが可能になるので、応答性に優れた水素生成装置100を提供することが可能になる。

[0072] ここで、上述した実施の形態では、円盤形状の空間41に1つの混合器101を配設した場合の形態について説明したが、この形態に限定されることはなく、複数の混合器を配設する形態としてもよい。

[0073] 図5は、本発明の実施の形態1に係る他のガス混合器102の内部構成を模式的に示す構成図であって、図5(a)はガス混合器102の平面図であり、図5(b)はガス混合器102の断面図である。尚、図5(a)では、ガス混合器102における後述する上側の流路規定部材45a〜45dを太い実線により示しており、下側に配置される流路規定部材46a〜46dを太い破線により示しており、下側に配置される流路規定部材53a〜53d及び54a〜54dを細い実線及び破線により示している。又、図5(a)及び図5(b)では、図2(a)及び図2(b)に示す構成要素と同一の構成要素に対しては、同一の符号を付している。

[0074] 図5(a)及び図5(b)に示すように、本発明の実施の形態1に係る他のガス混合器102では、図2(a)及び図2(b)に示すガス混合器101を中心軸Cの方向に2段重ねた構成に相当する構成を備えている。つまり、このガス混合器102では、分割隔壁50と流路規定部材45a〜45d及び流路規定部材46a〜46dとからなる第1のガス混合器101と、分割隔壁58と流路規定部材53a〜53d及び流路規定部材54a〜54dとからなる第2のガス混合器101'とを、その中央部に連通孔51の直径と略同一径の直径の孔を有する円盤状の仕切り板57を介して2段積層した構成が採られている。そして、図5(a)に示すように、このガス混合器102では、ガス混合器101と第2のガス混合器101'との位置関係が45°の回転角度を有するようにして、中心軸Cの方向にガス混合器101と第2のガス混合器101'とを2段積層した構成が採られている。尚、その他の点については、図2(a)及び図2(b)に示すガス混合器101の場合と同様である。

- 。
- [0075] このように構成されたガス混合器102によれば、分割隔壁50と仕切り板57と分割隔壁58とによって上昇流路9を通過した混合ガス47が中心軸Cの方向に混合ガス48及び混合ガス49及び混合ガス55及び混合ガス56の4つの混合ガスに分割されると共に、これらの混合ガス48及び混合ガス49及び混合ガス55及び混合ガス56の各々が流路規定部材45a～45d及び流路規定部材46a～46d及び流路規定部材53a～53d及び流路規定部材54a～54dによって各々所定の角度に旋回されるので、触媒配管42に供給される混合ガスにおける都市ガスと水蒸気との空間的な濃度の偏りをより一層均一化することが可能になる。
- [0076] 又、上述した本実施の形態では、分割隔壁50(分割隔壁50及び分割隔壁58)の片面に4枚の流路規定部材を90°毎に隔てて配設した場合の形態について説明したが、この形態に限定されることはなく、流路規定部材を任意の隔離角度で多数配設する形態としてもよい。この場合、流路規定部材の隔離角度を小さくする、つまり、流路規定部材の配設数を増加させるに従って、触媒配管42に供給される混合ガスにおける都市ガスと水蒸気との空間的な濃度の偏りをより一層均一化することが可能になる。
- [0077] 図6は、分割隔壁50の片面に8枚の流路規定部材を配設した場合におけるガス混合器103の構成を例示する平面図である。尚、図6では、ガス混合器103における後述する上側の流路規定部材59a～59hを実線により示しており、下側の流路規定部材60a～60hを破線により示している。又、図6では、図2(a)及び図2(b)に示す構成要素と同一の構成要素に対しては、同一の符号を付している。
- [0078] 図6に示すように、本発明の実施の形態1に係る他のガス混合器103では、分割隔壁50の上側に、8枚の流路規定部材59a～流路規定部材59hが配設されている。これらの流路規定部材59a～流路規定部材59hは、隣接する流路規定部材同士の隔離角度が45°となるようにして、分割隔壁50の片面に配設されている。又、図6に示すように、このガス混合器103では、分割隔壁50の下側に、流路規定部材60a～流路規定部材60hが配設されている。尚、これらの流路規定部材60a～流路規定部材60hも、流路規定部材59a～流路規定部材59hの配設形態と同様、隣接する流路

規定部材同士の隔離角度が45° となるようにして、分割隔壁50の片面に配設されている。尚、その他の点については、図2(a)及び図2(b)に示すガス混合器101の場合と同様である。このように、流路規定部材の枚数を増やすことによっても、触媒配管42に供給される混合ガスにおける都市ガスと水蒸気との空間的な濃度の偏りをより一層均一化することが可能になる。

[0079] 尚、本実施の形態では、図2(a)に示すように、流路規定部材の形状を緩やかに湾曲する形状としているが、流路規定部材の形状はこのような湾曲状の形状に限定されることはなく、供給する混合ガスの流量や流れ易さ等に応じて、より簡単な形状やより複雑な形状としてもよい。

[0080] 又、本実施の形態では、少なくとも炭素と水素とから構成される有機化合物を含む原料として都市ガスを用いる形態について説明したが、本発明は使用する原料の種類を限定することではなく、アルコールやLPGや灯油等を原料とする場合に対しても有効である。特に、アルコールや灯油等の液体燃料を使用してこれを水と一緒に混合して蒸発させる場合には、これらの原料と水蒸気との空間的な濃度分布が生じ易いため、本発明は極めて有効な技術となる。

[0081] (実施の形態2)

本発明の実施の形態2では、例えば、供給される混合ガスを流通させる改質ガス供給用流路と、改質ガスを生成するための水蒸気改質反応を進行させる反応部との間の流路にガス混合器を配設して、このガス混合器により混合ガスの混合状態を垂直方向において改善する形態について説明する。

[0082] 先ず、本発明の実施の形態2に係る水素生成装置200の基本的な構成及び動作について、図7を参照しながら説明する。

[0083] 図7は、本発明の実施の形態2に係る水素生成装置200の内部構成を模式的に示す縦断図である。尚、図7中に記載している矢印は、原料や水蒸気等のガスが流れる方向を示している。

[0084] 図7に示すように、本実施の形態に係る水素生成装置200は、実施の形態1で示した水素生成装置100の構成と同様、多重同心円筒状の構成を備えている。即ち、この水素生成装置200は、水蒸気改質反応を進行させるための高温状態の燃焼ガス



を生成する燃焼バーナー16と、水が供給されると共に燃焼バーナー16により加熱されて湿り水蒸気又は水蒸気を生成する加熱器17及び18とを備えている。又、この水素生成装置200は、燃焼バーナー16を中心とした複数の同心円筒19〜28により構成される複数の円環状空間に、燃焼バーナー16によって生成した高温状態の燃焼ガスが通過する燃焼ガス用流路29と、原料と水蒸気との混合ガスが水蒸気改質反応に利用される前に均一な混合状態となるよう混合するガス混合器201と、所定の反応温度に加熱されて水蒸気改質反応を進行させる改質触媒層31と、この改質触媒層31において生成した高温状態の改質ガスの温度を低下させるために熱を回収する熱回収層32と、この熱回収層32により冷却された改質ガス中の一酸化炭素の濃度を所定の化学反応により低減するための変成触媒層33と、この変成触媒層33により一酸化炭素の濃度が低減された改質ガスと選択酸化反応用の空気を供給する空気供給部34から取り入れた空気とを十分に混合するためのガス混合器201と同様の構成を有するガス混合器202と、このガス混合器202を通過して空気が十分に混合された改質ガス中の一酸化炭素の濃度を選択酸化反応により更に低減するための選択酸化触媒層37とを、図1に示す実施の形態1に係る水素生成装置100の場合と同様にして、燃焼バーナー16を中心として同心円筒状に備えている。尚、本実施の形態では、複数の同心円筒19〜28により複数の円環状空間が構成されている形態を示しているが、円環状空間に相当する空間は同心筒であればよく、同心円筒により円環状空間が構成される形態に限定されることはない。

- [0085] 上述したように、本実施の形態に係る水素生成装置200では、同心円筒20及び21により構成される円環状空間の改質触媒層31の上方に、供給される原料と水蒸気とを十分に混合するための本発明を特徴付けるガス混合器201が配設されている。このガス混合器201は、同心円筒20及び21により構成される円環状空間に勘合可能なリング状の形状を有しており、同心円筒20及び21により構成される円環状空間における改質触媒層31の上方の所定位置に、所定の固定手段によって固定されている。又、本実施の形態に係る水素生成装置200では、同心円筒26及び27により構成される円環状空間の選択酸化触媒層37の下方に、供給される改質ガスと空気とを十分に混合するための本発明を特徴付けるガス混合器202が配設されている。

このガス混合器202は、同心円筒26及び27により構成される円環状空間に勘合可能なリング状の形状を有しており、同心円筒26及び27により構成される円環状空間における選択酸化触媒層37の下方の所定位置に、所定の固定手段によって固定されている。これらのガス混合器201及びガス混合器202の構成については、ガス混合器202を代表として後に詳細に説明する。

[0086] このように構成された本実施の形態に係る水素生成装置200では、水蒸気改質反応において使用される水は、加熱器17若しくは加熱器18に供給されて少なくともその一部が気化し、加熱器17又は加熱器18から排出された水(温水)は、図7では特に図示しない混合部において原料としての都市ガスと一次的に混合された後、同心円筒25と同心円筒26との間、及び、同心円筒24と同心円筒25との間の各々の空間を移動する間に完全に気化して、都市ガスと混合される。そして、この都市ガスと水蒸気との混合ガスは、ガス混合器201に供給され、このガス混合器201を通過する際に十分に混合された後、改質触媒層31に供給される。尚、このガス混合器201による混合ガスの混合状態の改善作用については、ガス混合器202を代表として後に詳細に説明する。

[0087] ガス混合器201から都市ガスと水蒸気とが十分に混合された混合ガスは、その後、改質触媒層31に供給される。そして、この改質触媒層31が燃焼ガス用流路29を流れる燃焼ガスによって加熱されて進行する水蒸気改質反応に利用されて、混合ガスから水素を豊富に含有する改質ガスが生成される。そして、この水蒸気改質反応によって生成された改質ガスは、その後、熱回収層32を通過して所定の温度にまで冷却された後、変成触媒層33に供給される。そして、この変成触媒層33において進行する変成反応によって、改質ガスに含有される一酸化炭素の多くが除去される。

[0088] 変成触媒層33によって一酸化炭素の多くが除去された改質ガスは、その後、空気供給部34から取り入れた空気と変成触媒層33を通過した改質ガスとを十分に混合するためのガス混合器202に供給される。そして、改質ガスは、ガス混合器202を通過する際に空気供給部34から供給される空気と十分に混合され、その後、選択酸化触媒層37に供給される。尚、このガス混合器202による改質ガスと空気との混合状態の改善作用については、上述したガス混合器201の場合と合わせて後に詳細に

説明する。

- [0089] ガス混合器202によって空気と十分に混合された改質ガスは、少量含まれる一酸化炭素の殆どを除去するために、選択酸化触媒層37に供給される。そして、この選択酸化触媒層37において進行する選択酸化反応によって、改質ガスに含有される一酸化炭素の殆どが、空気が用いられる燃焼によって除去される。尚、一酸化炭素が十分に除去された改質ガスは燃料電池に供給され、この燃料電池における発電のための化学反応に利用される。又、燃料電池での発電に用いられなかった余剰の改質ガスは燃焼バーナー16に供給され、この燃焼バーナー16における燃焼ガスの生成のために再利用される。
- [0090] 次に、本発明の実施の形態2に係るガス混合器202の構成について、図面を参照しながら詳細に説明する。
- [0091] 図8は、本発明の実施の形態2に係るガス混合器202の内部構成を模式的に示す縦断面図である。尚、図8では、ガス混合器202における紙面手前側に位置する後述する内側流路規定部材62c〜62d及び外側流路規定部材63c〜63dの記載は省略している。又、図8では、内側流路規定部材62a〜62b及び外側流路規定部材63a〜63bの視認可能な部分を実線により示しており、それらの視認不可能な部分を破線により示している。
- [0092] 以下、ガス混合器202を例に挙げて、その構成を詳細に説明する。
- [0093] 図8に示すように、本実施の形態に係るガス混合器202は、図7に示す同心円筒26と同心円筒27との間に形成される円環状空間を上昇する空気が供給された改質ガス64を改質ガス65及び改質ガス66の如く左右方向（半径方向）に2分割する円筒状の混合用同心円筒61を有している。そして、この混合用同心円筒61と図7に示す同心円筒26との間に、改質ガス64の上昇方向に向かって左回りとされた螺旋形状の4つの内側流路規定部材62a〜62d（紙面手前側にある内側流路規定部材62c及び62dは図示せず）が、改質ガス65が流れる方向を改質ガス64の上昇方向に向かって左周りに旋回させることが可能となるように、各々配設されている。又、図8に示すように、混合用同心円筒61と図7に示す同心円筒27との間に、改質ガス64の上昇方向に向かって右回りとされた螺旋形状の4つの外側流路規定部材63a〜63d（紙面

手前側にある外側流路規定部材63c及び63dは図示せず)が、改質ガス66が流れる方向を改質ガス64の上昇方向に向かって右周りに旋回させることが可能となるように、各々配設されている。これらの混合用同心円筒61及び内側流路規定部材62a〜62d及び外側流路規定部材63a〜63dにより、改質ガス64の流れを改質ガス65及び66に分割すると共に、その分割した改質ガス65及び66の流れを中心軸Cに対して互いに逆方向に旋回させる規定流路を有するガス混合器202が構成されている。

[0094] 本実施の形態に係るガス混合器202では、内側流路規定部材62a〜62d及び外側流路規定部材63a〜63dは各々所定の横壁によって構成されている。そして、これらの内側流路規定部材62a〜62d及び外側流路規定部材63a〜63dは、混合用同心円筒61及び同心円筒26の間の空間と混合用同心円筒61及び同心円筒27の間の空間とを各々円周方向に4分割し、この4分割した各々の空間において改質ガス64の上昇方向に向かって円周方向の対向する方向(右回り、又は、左周り)に90°旋回する螺旋形状となるように、各々配設されている。例えば、内側流路規定部材62aと外側流路規定部材63aとが配設されている上記4分割した内の1部分に着目した場合、内側流路規定部材62aの下端と対向する位置に外側流路規定部材63aの上端が配置されており、又、内側流路規定部材62aの上端と対向する位置に外側流路規定部材63aの下端が配置されている。そして、内側流路規定部材62aの上端と下端との隔離角度は90°とされており、同様にして、外側流路規定部材63aの上端と下端との隔離角度も90°とされている。このように、本実施の形態に係るガス混合器202は、混合用同心円筒61によって分割された改質ガス65及び66の流れを中心軸Cに対して互いに逆方向に90°旋回させることができるように構成されている。尚、上述した内側流路規定部材62a〜62d及び外側流路規定部材63a〜63dの形状は、各流路に流れる改質ガスの流量を等しくするために、各々同一の形状を有していることが好ましい。

[0095] 次に、本発明の実施の形態2に係るガス混合器202による改質ガスの混合状態の改善作用について、図面を参照しながら詳細に説明する。

[0096] 図9は、ガス混合器202における改質ガスの流れを模式的に示す解説図であって、

図9(a)は混合用同心円筒61によりその内側に分割された改質ガス65の流れを模式的に示す解説図であり、図9(b)は混合用同心円筒61によりその外側に分割された改質ガス66の流れを模式的に示す解説図である。尚、図9(a)及び図9(b)は、図8に示す縦断図と同一方向から見た場合の縦断図を示している。又、図9(a)及び図9(b)では、混合用同心円筒61の下側から流入する改質ガス65及び改質ガス66の流れを各々矢印により便宜的に示している。

[0097] 図9(a)に示すように、本実施の形態に係るガス混合器202では、同心円筒26及び27の間の空間を上昇して混合用同心円筒61によってその内側に分割された改質ガス65は、内側流路規定部材62a及び62bによって中心軸Cの周りを左周りに90° 旋回された後、ガス混合器202の上方から排出される。一方、図9(b)に示すように、本実施の形態に係るガス混合器202では、同心円筒26及び27の間の空間を上昇して混合用同心円筒61によってその外側に分割された改質ガス66は、外側流路規定部材63a及び63bによって中心軸Cの周りを右周りに90° 旋回された後、ガス混合器202の上方から排出される。このように、ガス混合器202に導入された改質ガス64は、混合用同心円筒61、内側流路規定部材62a～62d、及び外側流路規定部材63a～63dによって、2つの改質ガス65及び66に示す流れに分割されると共に、各々円周方向に左右逆方向に90° 旋回され、その後、その分割された2つの改質ガス65及び66が1つの流れに再び合流されて混合される。

[0098] 図10は、図9に示す本実施の形態に係るガス混合器202の動作を更に分かり易く説明するための解説図である。尚、図10は、図9に示すガス混合器202の中心軸C上に視点を置いて360° 回転視した場合に観察される状態を模式的に示す解説図である。又、図10では、ガス混合器202の中心軸C上の視点から直接的に視認可能な内側流路規定部材62a～62dを実線により示しており、又、ガス混合器202の中心軸C上の視点から直接的に視認不可能な外側流路規定部材63a～63dを破線により示している。又、ガス混合器202の円周を90° 毎に4分割した位置を、0° ～270° として示す破線により図示している。

[0099] 図10に示すように、本実施の形態に係るガス混合器202では、混合用同心円筒61の内側を流れる改質ガス65はガス混合器202の内部を左方向に90° 旋回され、

混合用同心円筒61の外側を流れる改質ガス66はガス混合器202の内部を右方向に90° 旋回されて各々ガス混合器202の上方から排出され、その後、ガス混合器202の出口部において混合する。この場合、例えば、図10に示す90° の出口位置Iから排出される改質ガスは、図10に示す0° の位置と180° の位置とから流入する改質ガスの半量が混合した改質ガスであることは明白である。又、その他の出口位置J〜Lから排出される流体についても、出口位置Iから排出される流体の場合と同様に、180° 離れた位置から流入する各々の改質ガスの半量が混合した改質ガスであることは、図10から明らかである。即ち、本実施の形態に係るガス混合器202によれば、内側流路規定部材62a〜62d及び外側流路規定部材63a〜63dによって180° 離れた位置から流入する各々の混合ガスの半量を混合することができるので、同心円筒26及び27で構成される円環状流路の180° 対向する反対位置を流れる混合ガス同士を効果的に混合することが可能になる。換言すれば、実施の形態1の場合と同様、互いに離れた位置に存在する2種類の混合ガスの接触する接触場が多くなるので、空間的な濃度分布の偏りを均一化することが可能になる。

[0100] 又、本実施の形態に係るガス混合器202によれば、ガス混合器202における内側流路規定部材62a〜62d及び外側流路規定部材63a〜63dが横壁で構成されているので、熱容量が小さく、起動や負荷変動に対応するために要する待機時間を短縮化することが可能になる。又、本実施の形態に係るガス混合器202は優れた混合性能を有しているので、従来の水素生成装置300で必要であった2段の混合層35, 36及び選択酸化触媒層37, 38を、1段のガス混合層202及び選択酸化触媒層37に簡略化することができる。そのため、水素生成装置200の熱容量を更に低下させることが可能となり、しかも、選択酸化反応用の空気の供給量を必要最小限に抑えることができるため、生成した水素の選択酸化用の空気による無駄な消費を抑制することができ、高効率な水素生成装置200を得ることが可能になる。

[0101] ここで、本実施の形態では、ガス混合器202が混合用同心円筒61の両側に4枚の内側流路規定部材62a〜62dと4枚の外側流路規定部材63a〜63dとを備える形態について説明しているが、このような形態に限定されることはなく、例えば、図11に示すように、混合用同心円筒61の両側に45° の等間隔で配設された8枚の内側流路

規定部材67a〜67hと、45° の等間隔で配設された8枚の外側流路規定部材68a〜68hとを備える形態としてもよい。この場合、内側流路規定部材67a〜67h及び外側流路規定部材68a〜68hの各々は、図8に示す改質ガス65及び66の各々の流れを互いに逆方向に45° 旋回させることができる。従って、かかる構成とすることにより、図11において2つの矢印で改質ガスの流れを示すように、ガス混合器203の入口において円周方向に90° 離れた位置に存在する改質ガス同士を効果的に混合することが可能になる。

[0102] 又、上述したように、本実施の形態では、ガス混合器202が混合用同心円筒61の両側に4枚の内側流路規定部材62a〜62dと4枚の外側流路規定部材63a〜63dとを備える形態について説明しているが、このような形態に限定されることはなく、例えば、図12に示すように、混合用同心円筒61の両側に90° の等間隔で配設された8枚の内側流路規定部材67a〜67hと、90° の等間隔で配設された8枚の外側流路規定部材68a〜68hとを備える形態としてもよい。この場合、内側流路規定部材67a〜67h及び外側流路規定部材68a〜68hの各々は、図8に示す改質ガス65及び66の各々の流れを互いに逆方向に90° 旋回させることができる。従って、かかる構成とすることにより、図12において2つの矢印で流体の流れを示すように、ガス混合器204の入口において円周方向に180° 離れた位置に存在する改質ガス同士をより一層効果的に混合することが可能になる。

[0103] つまり、本実施の形態では、ガス混合器202における内側流路規定部材及び外側流路規定部材の個数を、改質ガスの種類や要求される混合状態に応じて増減することにより、より一層優れた効果を得ることが可能である。又、それらの内側流路規定部材及び外側流路規定部材の形状も、図8〜12に図示したような曲線状の形状に限定されることはなく、圧力損失の低減やより効果的な混合を目的として、直線状の形状や、直線状の形状と曲線状の形状とを組み合わせた形状としてもよい。

[0104] 図13は、本実施の形態に係るガス混合器201における第1の流体(例えば、原料)と第2の流体(例えば、水蒸気)との混合ガスの混合角度と、ガス混合器201を通過した混合ガスを用いた場合の改質触媒層における改質反応転化率との関係を模式的に示す相関図である。ここで、図13における曲線aは、混合ガスの旋回角度と改質反

応転化率との相関関係を示している。尚、図13では、縦軸は改質触媒層における改質反応転化率(%)を示しており、横軸は第1の流体と第2の流体との混合ガスの混合角度(°)を示している。

[0105] 図13に示すように、改質触媒層31の上流の位置にガス混合器201を設けることにより、水蒸気改質反応における反応転化率を向上させることができ、改質器効率の向上を図ることができることが分かる。特に、図13に示すように、混合ガスの旋回角度が90°である場合に、最も高い転化率を得ることが可能である。しかし、混合ガスの旋回角度が45°よりも小さい場合では、転化率の向上は得られるものの、その向上効果は比較的小さい。そこで、本実施の形態に係るガス混合器201においては、内側流路規定部材及び外側流路規定部材による混合ガスの旋回角度を、45°以上90°以下とすることが効果的である。

[0106] 尚、本実施の形態では、内側流路規定部材及び外側流路規定部材の各々を横壁によって構成する形態を例示しているが、この場合には横壁の3次元的な成型が必要になるので、ガス混合器の製造コストが高コスト化する可能性がある。そこで、内側流路規定部材及び外側流路規定部材の各々を横壁によって構成する形態に代えて、内側流路規定部材及び外側流路規定部材の各々を丸棒や角棒等の棒材を用いて構成する形態としてもよい。かかる構成とすることにより、丸棒や角棒等の棒材の3次元的な成型は比較的容易であるので、ガス混合器の製造コストが高コスト化することを回避することが可能になる。

[0107] 又、本実施の形態では、ガス混合器202の構成及び動作について詳細に説明したが、ガス混合器201の構成及び動作はガス混合器202の構成及び動作と同様である。又、本実施の形態では、改質触媒層31に供給される原料と水蒸気との混合のためにガス混合器201を配設すると共に、選択酸化触媒層37に供給される改質ガスと空気との混合のためにガス混合器202をも配設する形態を例示しているが、このような形態に限定されることはなく、要求される水素生成装置の性能に応じて、何れか一方にのみガス混合器を配設する形態としてもよい。

[0108] (実施の形態3)

本発明の実施の形態3では、実施の形態2において示した水素生成装置200の構



成と比べて、ガス混合器の内部構成のみが異なっている。そのため、本発明の実施の形態3では、ガス混合器の内部構成についてのみ説明する。

- [0109] 図14は、本発明の実施の形態3に係るガス混合器205の内部構成を模式的に示す構成図であって、図14(a)はガス混合器205の上面図であり、図14(b)はガス混合器205の側面図である。尚、図14(a)及び図14(b)では、リング状の形状を有するガス混合器205を説明のために平面状に展開した場合の状態を模式的に示している。又、図14(a)では、同心円筒26、同心円筒27、及び混合用同心円筒61の目視可能な部分を実線により示しており、同心円筒26、同心円筒27、及び混合用同心円筒61の目視不可能な部分を破線により示している。又、図14(b)では、紙面手前側の内側流路規定部材62a～62dを実線により示しており、紙面後側の外側流路規定部材63a～63dを破線により示している。又、図14では、図8に示したガス混合器202と同一の構成要素には、同一の符号を付している。又、図14を用いる説明では、都市ガス等の原料と水蒸気との混合ガス、若しくは、改質ガスと空気とが混合した改質ガス等の流体が、図14の下方から上方に向けて流動するものと仮定する。
- [0110] 本実施の形態で示すガス混合器205は、基本的には、図8に示したガス混合器202の内部構成と概ね同様の内部構成を有している。つまり、本実施の形態に係るガス混合器205は、図14(a)及び図14(b)に示すように、分割隔壁61の両面に、4枚の内側流路規定部材62a～62dと、4枚の外側流路規定部材63a～63dとを備えている。
- [0111] しかしながら、本実施の形態に係るガス混合器205では、図14(a)及び図14(b)に示すように、内側流路規定部材62a～62dによって規定される混合ガス等の流体の各出口部69と、外側流路規定部材63a～63dによって規定される混合ガス等の流体の各出口部70との各々の略半分が、矩形状の形状を有する邪魔板71によって各々閉鎖されている点において、実施の形態2で示したガス混合器202の構成と異なっている。つまり、本実施の形態に係るガス混合器205では、ガス混合器205の上述した各出口部69、70に邪魔板71を設けることにより、各出口部69、70の開口面積を狭めている点において、実施の形態2で示したガス混合器202の構成と異なっている。尚、その他の点については、実施の形態2で示したガス混合器202の構成と同様

である。

[0112] 本実施の形態で示すガス混合器205では、上述したように、例えば、図14(b)に示す内側流路規定部材62c及び62dによって規定される混合ガス等の流体の出口部69が邪魔板71によって部分的に閉鎖されており、これにより、出口部69の開口面積が略半分にまで狭められている。このように、出口部69、及びそれに相当する他の出口部の開口面積を略半分にまで狭める構成とすることにより、ガス混合器205から排出される流体の流速を速めることが可能になる。そして、かかる構成とすることにより、ガス混合器205から排出される、混合用同心円筒61の内側を流れる流体と外側を流れる流体との双方の流速が速まるので、混合ガス等の流体の混合状態をより一層改善することが可能になる。

[0113] 尚、本実施の形態では、邪魔板71の大きさを、例えば出口部69の面積の略半分を閉鎖可能な大きさとする形態について説明しているが、このような形態に限定されることはなく、要求される混合ガス等の流体の混合状態に応じて、邪魔板71の大きさを任意に設定することが可能である。

[0114] (実施の形態4)

本発明の実施の形態4でも、実施の形態2において示した水素生成装置200の構成と比べて、ガス混合器の内部構成のみが異なっている。そのため、本発明の実施の形態4では、実施の形態3の場合と同様、ガス混合器の内部構成についてのみ説明する。

[0115] 図15は、本発明の実施の形態4に係るガス混合器206の内部構成を模式的に示す構成図であって、図15(a)はガス混合器206の上面図であり、図15(b)はガス混合器206の側面図である。尚、図15(a)及び図15(b)でも、実施の形態3の場合と同様、リング状の形状を有するガス混合器を説明のために平面状に展開した場合の状態を模式的に示している。又、図15(a)では、同心円筒26、同心円筒27、及び混合用同心円筒61の目視可能な部分を実線により示しており、同心円筒26、同心円筒27、及び混合用同心円筒61の目視不可能な部分を破線により示している。又、図15(b)では、紙面手前側の内側流路規定部材62a〜62dを実線により示しており、紙面後側の外側流路規定部材63a〜63dを破線により示している。又、図15では、図8に

示したガス混合器202と同一の構成要素には、同一の符号を付している。

[0116] 本実施の形態で示すガス混合器206は、基本的に、実施の形態3で示すガス混合器205の内部構成と同様の内部構成を有している。つまり、本実施の形態に係るガス混合器206は、図15(a)及び図15(b)に示すように、混合用同心円筒61の両面に、4枚の内側流路規定部材62a〜62dと、4枚の外側流路規定部材63a〜63dとを備えている。

[0117] しかしながら、本実施の形態に係るガス混合器206では、図15(a)及び図15(b)に示すように、ガス混合器206における混合ガスや改質ガス等の流体が排出される出口部に、混合用同心円筒61の内側(つまり、内側流路規定部材62a〜62dが配設されている側)の流路若しくは外側(つまり、外側流路規定部材63a〜63dが配設されている側)の流路のみに開口する開口部72若しくは開口部73を有する邪魔板74が配設されていると共に、混合用同心円筒61における上述した出口部近傍の所定位置に開口部75が設けられている点において、実施の形態3で示したガス混合器205の構成と異なっている。ここで、図15(a)に示すように、邪魔板74における開口部72及び73は、同心円筒26側と同心円筒27側とにおいて邪魔板74の長手方向に交互に形成されている。又、開口部72及び73の各々の開口面積は、実施の形態3の場合と同様、例えば内側流路規定部材62aと62bとで規定される流路の出口部にける開口面積の約半分の面積とされている。又、図15(b)に示すように、開口部75は、混合用同心円筒61における上述した出口部側の端部の開口部72及び73に対応する位置に、略矩形状に形成されている。つまり、本実施の形態に係るガス混合器206では、ガス混合器206の上述した出口部に邪魔板74が配設されており、この邪魔板74に開口部72及び73が形成されており、混合用同心円筒61に開口部75が形成されている点において、実施の形態3で示したガス混合器205の構成と異なっている。尚、その他の点については、実施の形態3で示したガス混合器205の構成と同様である。

[0118] 本実施の形態で示すガス混合器206では、例えば、内側流路規定部材62a及び62bにより規定される流路を通過した流体は開口部75からのみ排出され、この際、外側流路規定部材63d及び63aにより規定される流路を通過した流体と混合され、そし

て、開口部73からガス混合器206の外部に排出される。つまり、本実施の形態に係るガス混合器206によれば、混合用同心円筒61の内側及び外側を通過した流体が開口部72及び開口部73及び75を通過する際に強制的に混合されるため、混合ガス等の流体の混合状態をより一層改善することが可能になる。

[0119] 尚、本実施の形態では、開口部72及び73の開口面積を、例えば、内側流路規定部材62b及び62cにより規定される流路の出口部の約半分の開口面積とする形態について説明しているが、このような形態に限定されることはなく、要求される混合ガス等の流体の混合状態に応じて、開口部72及び73の開口面積を任意に設定することが可能である。又、開口部75の開口面積や形状も、要求される混合ガス等の流体の混合状態に応じて、任意に設定することが可能である。

[0120] ところで、実施の形態2〜4において示すガス混合器201、202〜ガス混合器206は、非常にコンパクトであるため、複数のガス混合器を直列に配置してガス混合器集合体を構成しても、水素生成装置200の内部に配設することが可能である。この場合、ガス混合器が直列に集合されるので、混合ガス等の流体の混合状態を更により一層改善することが可能になる。

[0121] 図16は、本発明の実施の形態2及び4に係るガス混合器203及びガス混合器206を直列に集合した第1のガス混合器集合体207の内部構成を模式的に示す構成図である。尚、図16でも、実施の形態3の場合と同様、リング状の形状を有する第1のガス混合器集合体を説明のために平面状に展開した場合の状態を模式的に示している。

[0122] 図16に示す第1のガス混合器集合体207では、実施の形態4に示すガス混合器206が混合ガス等の流体の上流側に配置されていると共に、図11に示すガス混合器203が下流側に配置されている。これらのガス混合器203及びガス混合器206の各々の構成等については、実施の形態2及び4に記載の通りである。このように、複数のガス混合器203及び206を直列に配置することにより、個々のガス混合器203及び206が有する混合性能が加算されるので、混合ガス等の流体の混合状態を更により一層改善することが可能になる。

[0123] 又、図17は、本発明の実施の形態2及び4に係るガス混合器203及びガス混合器

206を直列に集合した第2のガス混合器集合体208の内部構成を模式的に示す構成図である。

- [0124] 図17に示す第2のガス混合器集合体208では、上述した第1のガス混合器集合体207ではガス混合器203の混合用同心円筒61とガス混合器206の混合用同心円筒61とが各々独立して配設されているのに対して、ガス混合器203とガス混合器206とが1枚の混合用同心円筒76を共有している点で、上述した第1のガス混合器集合体207の場合と異なっている。かかる構成とすることにより、ガス混合器集合体207の構成を簡素化することが可能になる。
- [0125] 以上、本発明の実施の形態1〜4によれば、ガス混合器の全体をステンレス等の薄板で構成することができるので、その重量を例えば300g以下とすることが可能になると共に、その熱容量も例えば $0.5\text{kJ/kg}\cdot^{\circ}\text{C}$ 程度とすることが可能になる。そのため、ガス混合器の加熱に要する熱量を例えば26kJ程度とすることができるので、水素生成装置の起動時間の遅れを例えば $1/5$ 以下にまで短縮化することが可能になる。又、ガス混合器の加熱に要する熱量を例えば26kJ程度とすることができるので、燃料電池システムの運転エネルギーを省電力化することが可能になる。
- [0126] 又、本発明の実施の形態1〜4によれば、ガス混合器の熱容量をセラミック球等が充填されたガス混合器の熱容量の $1/5$ 以下にまで低下することができるので、ガス混合器の表面において水蒸気が冷却により凝縮することを効果的に防止することが可能になる。これにより、水素生成装置の起動時において $S/C$ 比が低下することを効果的に防止することが可能になる。又、改質触媒の触媒性能を長期間に渡って安定して維持することが可能になる。
- [0127] 更に、本発明の実施の形態1〜4によれば、改質触媒層に供給される都市ガスと水蒸気との混合ガスや選択酸化触媒層に供給される空気が混合された改質ガス等の流体の混合状態がガス混合器によって飛躍的に改善されるので、改質触媒層において効率よく改質ガスが生成されると共に、選択酸化触媒の量も最小限とすることが可能になる。そのため、改質触媒層や選択酸化触媒層を小型化することが可能になる。又、選択酸化触媒層において改質ガス中の水素を無駄に燃焼することを防止できるので、高効率な水素生成装置を提供することが可能になる。

### 産業上の利用可能性

- [0128] 本発明に係る水素生成装置は、軽量でありかつ熱容量が小さい高性能のガス混合器を備えた、水素生成効率及び応答性に優れる水素生成装置として有用である。
- [0129] 又、本発明によれば、改質触媒層に供給する原料と水蒸気との混合ガス等の流体における時間的及び空間的な濃度の不均一性を解消することが可能である。そして、その結果、改質ガスの濃度の時間的及び空間的な均一性を確保することができるので、改質触媒層やその下流側に配設される変成反応器等の一酸化炭素除去触媒層を有効に使用することが可能となり、各触媒量の低減や水素生成装置の小型化に大きく貢献することが可能になる。

### 請求の範囲

- [1] 2以上の成分を含有する混合ガスが流通する混合ガス流路と、  
各々の始端が前記混合ガス流路から分岐し各々の終端が互いに合流する第1の流路及び第2の流路と、  
前記第1の流路に設けられ該第1の流路を流れる混合ガスを第1の方向に旋回させる第1の旋回手段と、  
前記第2の流路に設けられ該第2の流路を流れる混合ガスを第1の方向と反対の第2の方向に旋回させる第2の旋回手段と、  
前記合流した第1の流路及び第2の流路の終端から流出する前記混合ガスを化学反応させて水素を生成する水素生成部と、  
を備えた、水素生成装置。
- [2] 前記第1の流路及び前記第2の流路は、前記混合ガスが、前記第1の流路の終端及び第2の流路の終端からの混合ガスの流出方向に垂直な平面内を流れながら、それぞれ、前記第1の方向の旋回及び前記第2の方向の旋回を行うように形成されている、請求項1記載の水素生成装置。
- [3] 前記第1の流路及び前記第2の流路が、それぞれ、互いに一致する中心軸を有し、外周面が開放され、かつ中心に円形の開口を有する中空状に形成され、前記外周面が始端たる入口を構成するとともに前記開口が終端たる出口を構成しており、  
前記第1の旋回手段が前記第1の流路の内部空間を前記中心軸に沿う方向に仕切りかつ該内部空間の外周から内方へ終端が始端に対して半径方向から前記第1の方向にずれるように延びる複数の隔壁で構成され、  
前記第2の旋回手段が前記第2の流路の内部空間を前記中心軸に沿う方向に仕切りかつ該内部空間の外周から内方へ終端が始端に対して半径方向から前記第2の方向にずれるように延びる複数の隔壁で構成されている、請求項2記載の水素生成装置。
- [4] 前記隔壁の始端に対する終端のずれが、前記中心軸の周りの回転角度において、 $45^{\circ}$  ～  $90^{\circ}$  の範囲の回転角度である、請求項3記載の水素生成装置。
- [5] 前記第1の流路及び前記第2の流路と、前記第1の旋回手段及び前記第2の旋回

- 手段とが、前記中心軸に沿って、それぞれ複数形成されている、請求項2記載の水素生成装置。
- [6] 前記第1の流路及び前記第2の流路は、前記混合ガスが、前記第1の流路の終端及び第2の流路の終端からの混合ガスの流出方向に平行な筒状の面内を流れながら、それぞれ、前記第1の方向の旋回及び前記第2の方向の旋回を行うように形成されている、請求項1記載の水素生成装置。
- [7] 前記第1の流路及び前記第2の流路が、それぞれ、前記中心軸を中心軸として共有しかつ環状の断面を有する筒状に形成され、一方の側の各々の端面が始端たる入口を構成するとともに他方の側の各々の端面が終端たる出口を構成しており、  
前記第1の旋回手段が前記第1の流路の筒状の内部空間を前記第1の方向に旋回するようにして螺旋状に仕切る複数の隔壁で構成され、  
前記第2の旋回手段が前記第1の流路の筒状の内部空間を前記第2の方向に旋回するようにして螺旋状に仕切る複数の隔壁で構成されている、請求項6記載の水素生成装置。
- [8] 前記隔壁の始端から終端までの旋回角度が $45^{\circ}$  ～  $90^{\circ}$  の範囲の旋回角度である、請求項7記載の水素生成装置。
- [9] 前記隔壁で区画された旋回流路の出口が一部閉鎖されている、請求項8記載の水素生成装置。
- [10] 前記第1の流路と前記第2の流路とが円筒状の分割隔壁で隔てられるようにして形成され、前記第1の流路及び前記第2の流路のいずれかの前旋回流路の出口が閉鎖され、前記分割隔壁の該閉鎖された出口の近傍部分に開口が形成されている、請求項9記載の水素生成装置。
- [11] 前記第1の流路及び前記第2の流路が、前記中心軸に沿って、それぞれ、複数形成され、前記混合ガスの流れにおいて上流側に位置する前記第1の流路及び前記第2の流路の終端が下流側に位置する前記第1の流路及び前記第2の流路の始端に接続されている、請求項6記載の水素生成装置。
- [12] 前記混合ガスが少なくとも炭素及び水素を有する有機化合物と水とが混合した混合ガスであり、前記化学反応が前記有機化合物と水とが混合した混合ガスから水素



を生成する水蒸気改質反応であり、前記水素生成部が前記水蒸気改質反応により水素を豊富に含有する改質ガスを生成する改質反応部であって、

前記第1の巡回手段及び前記第2の巡回手段が前記改質反応部の上流に配設され、

前記合流した第1の流路及び第2の流路の終端から流出する前記混合ガスが前記改質反応部に供給されて水素を生成する、請求項1記載の水素生成装置。

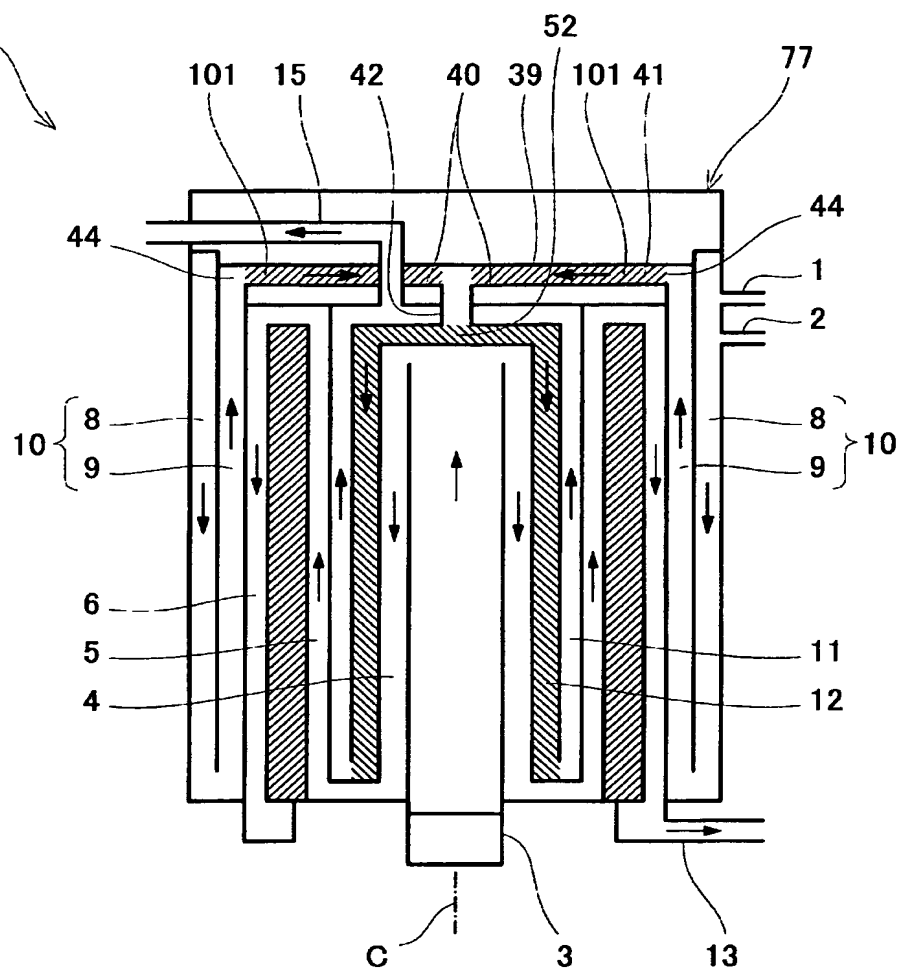
- [13] 前記混合ガスが前記改質ガスと酸素とが混合した混合ガスであり、酸素を用いて一酸化炭素を二酸化炭素に変換する選択酸化反応により前記改質ガス中の一酸化炭素を低減する選択酸化反応部を前記水素生成部に代えて備え、

前記第1の巡回手段及び前記第2の巡回手段が前記選択酸化反応部の上流に配設され、

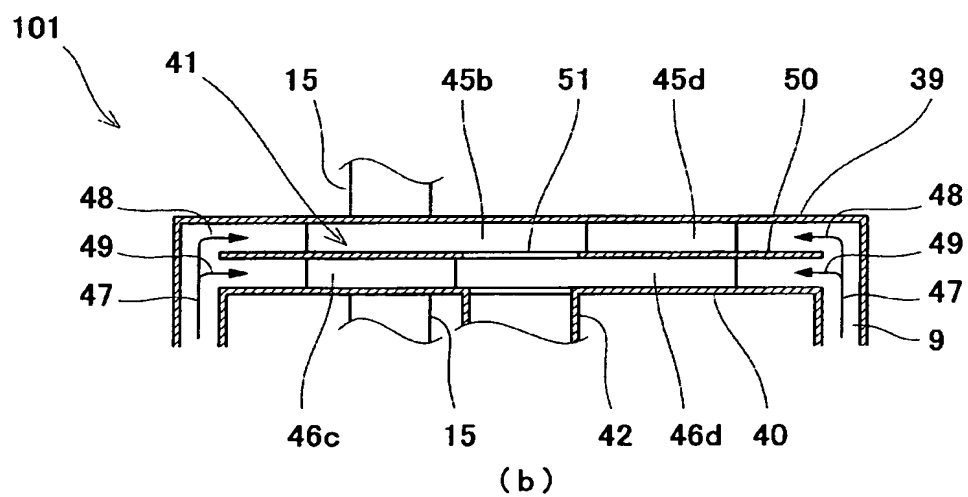
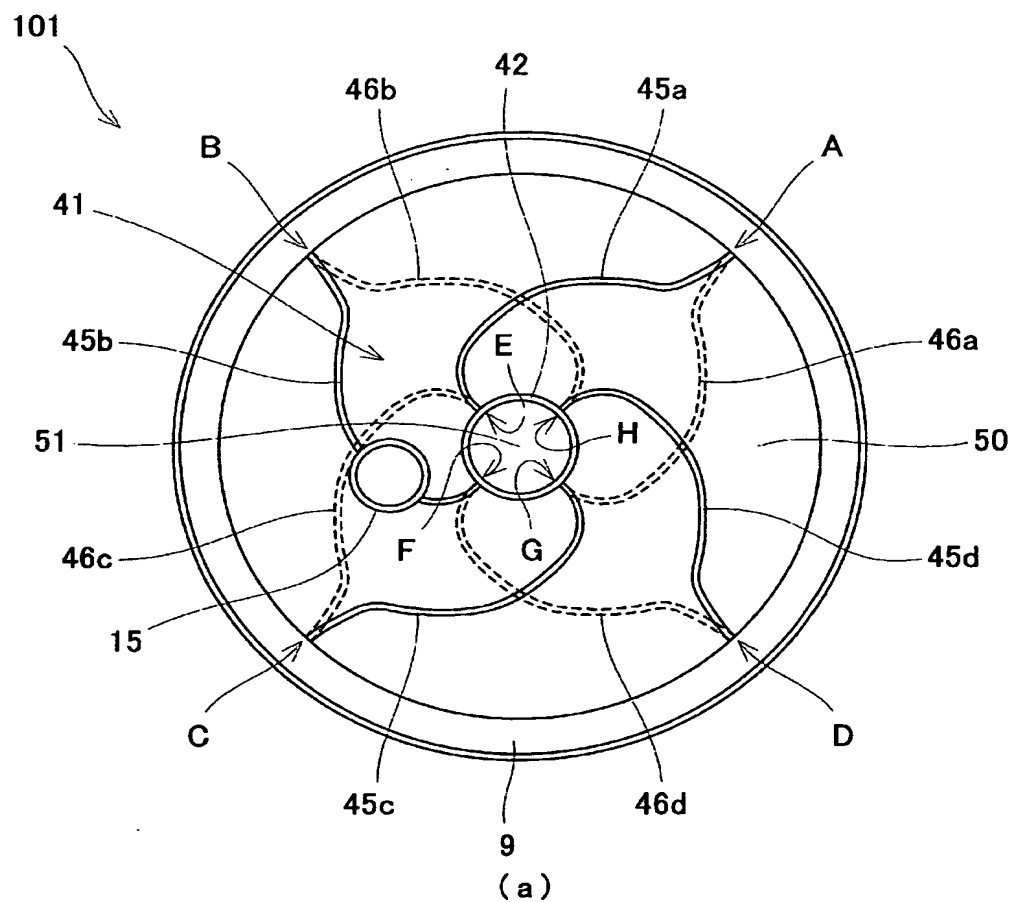
前記合流した第1の流路及び第2の流路の終端から流出する前記混合ガスが前記選択酸化反応部に供給されて前記改質ガス中の一酸化炭素を低減する、請求項1記載の水素生成装置。

[図1]

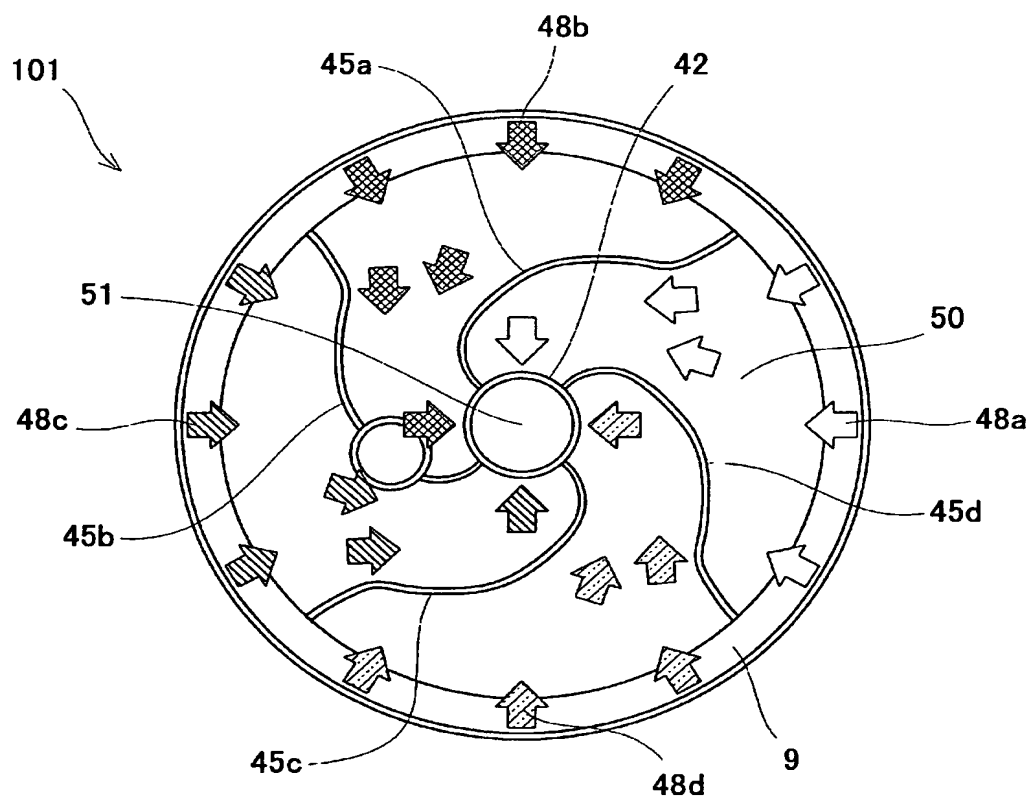
100



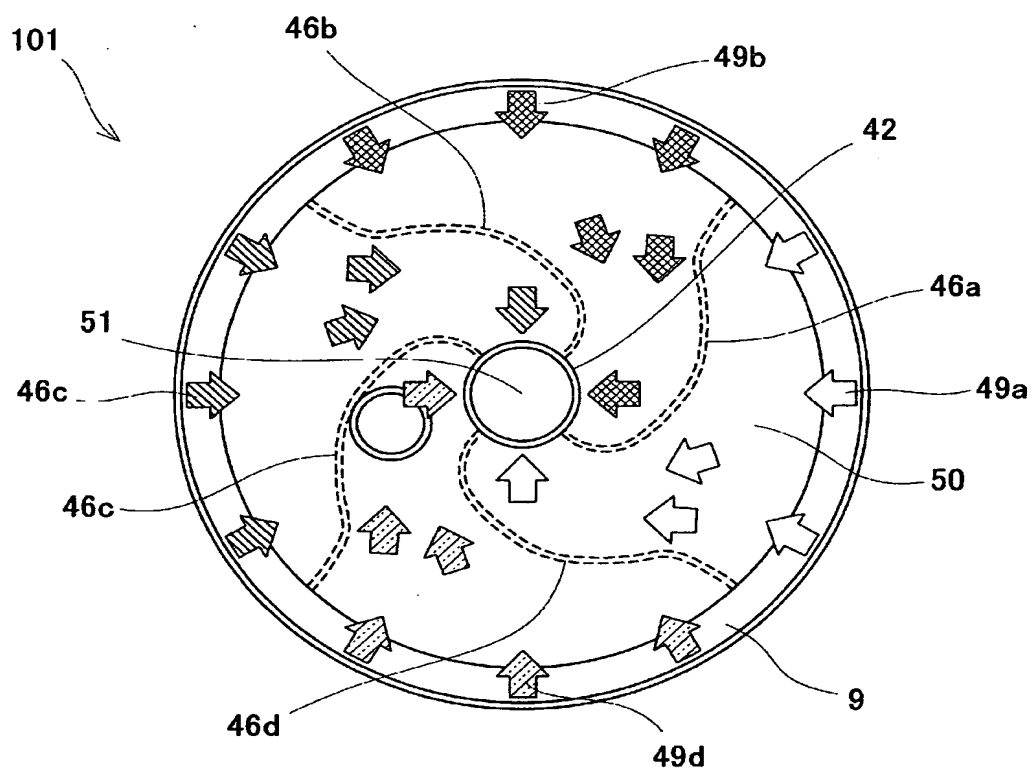
[図2]



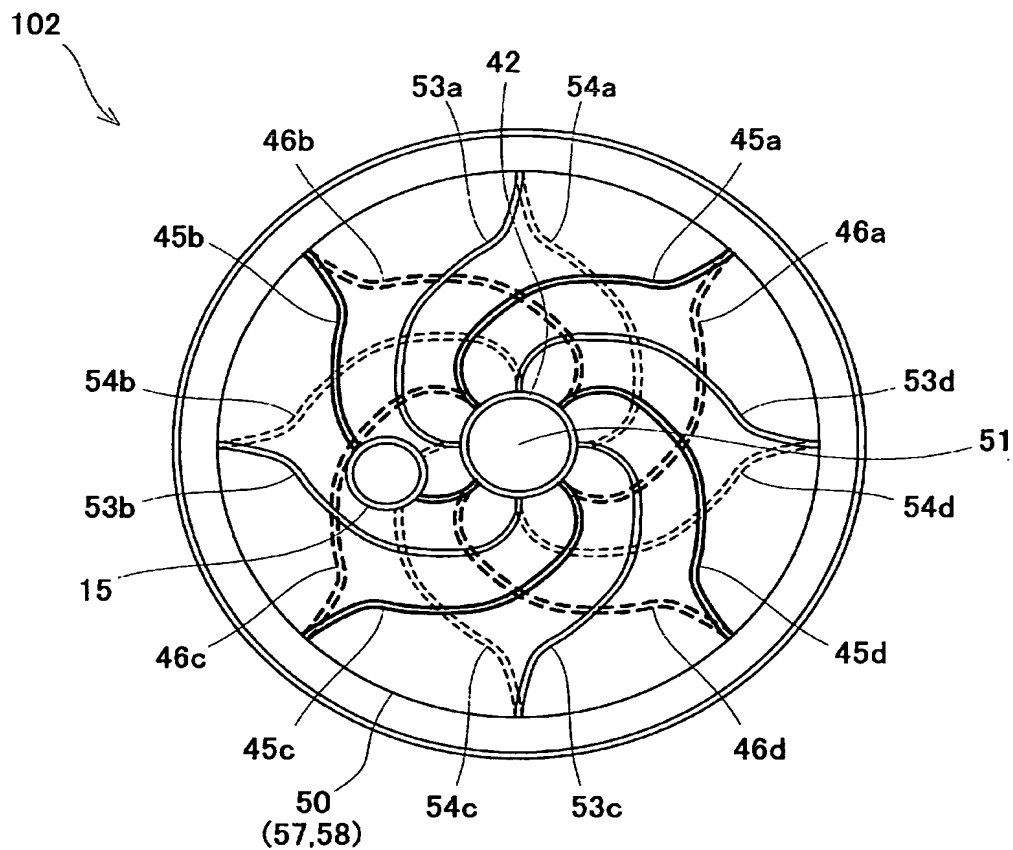
[図3]



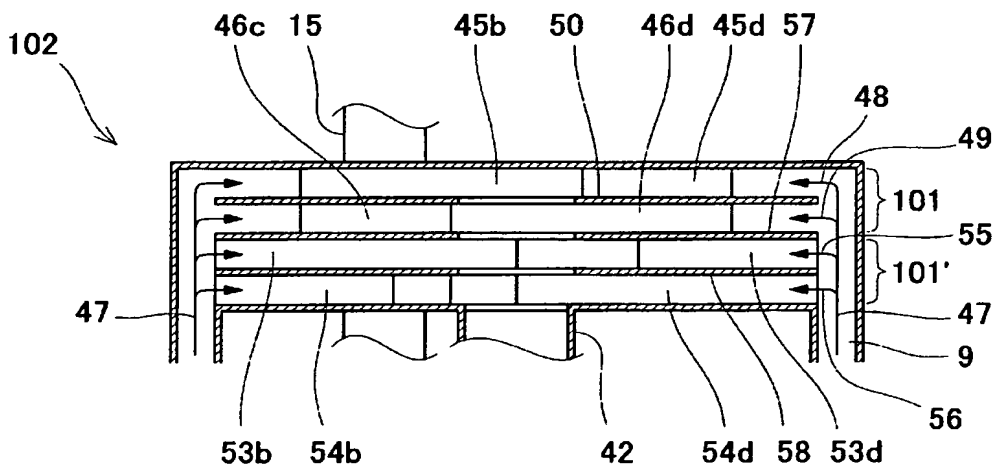
[図4]



[図5]



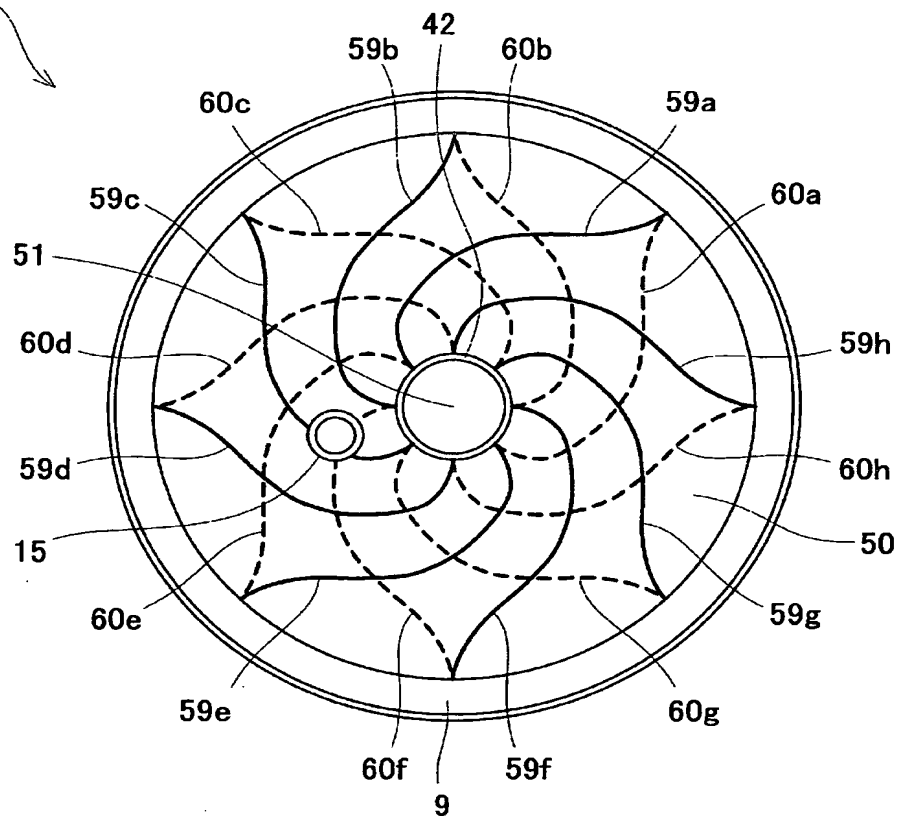
(a)



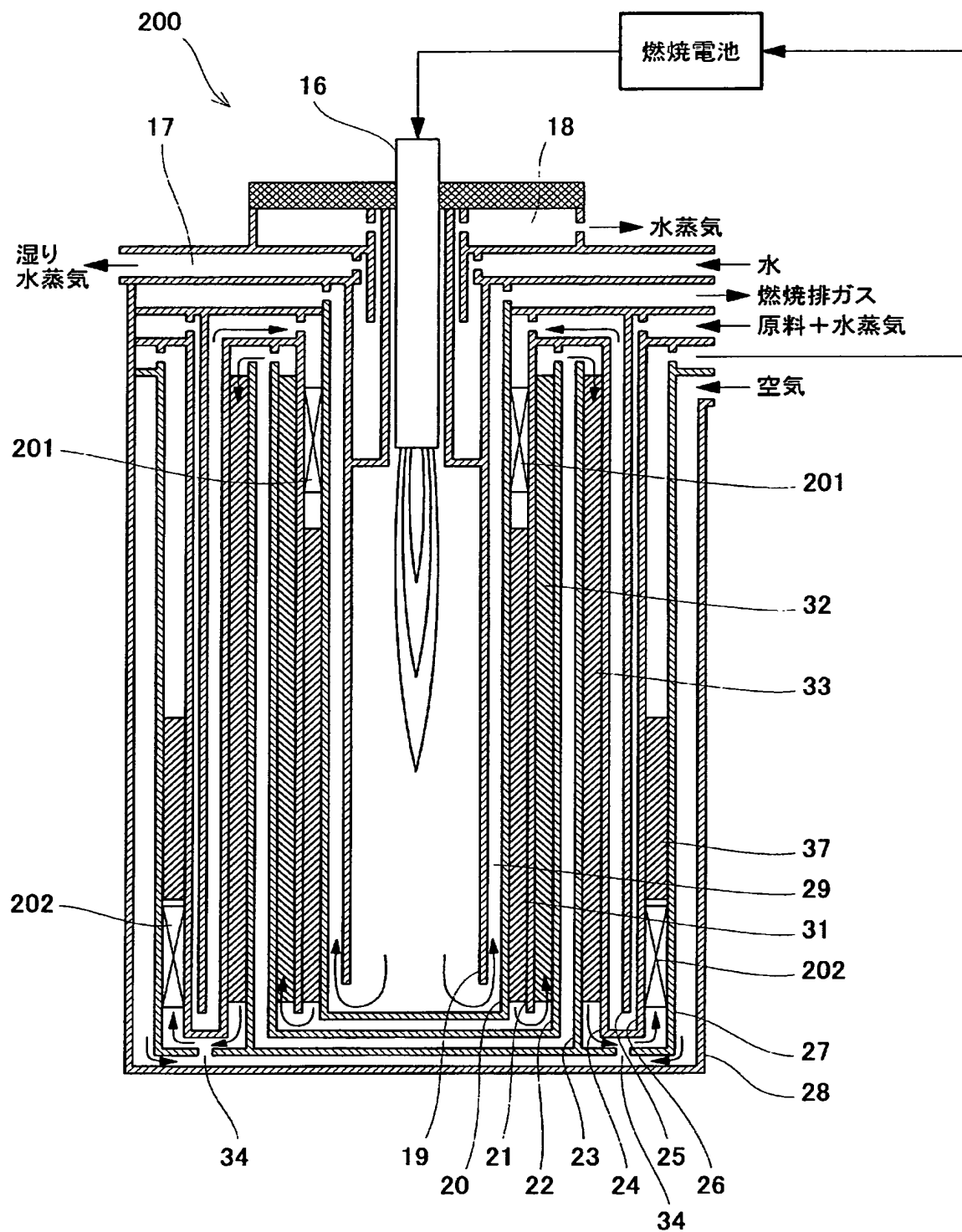
(b)

[図6]

103

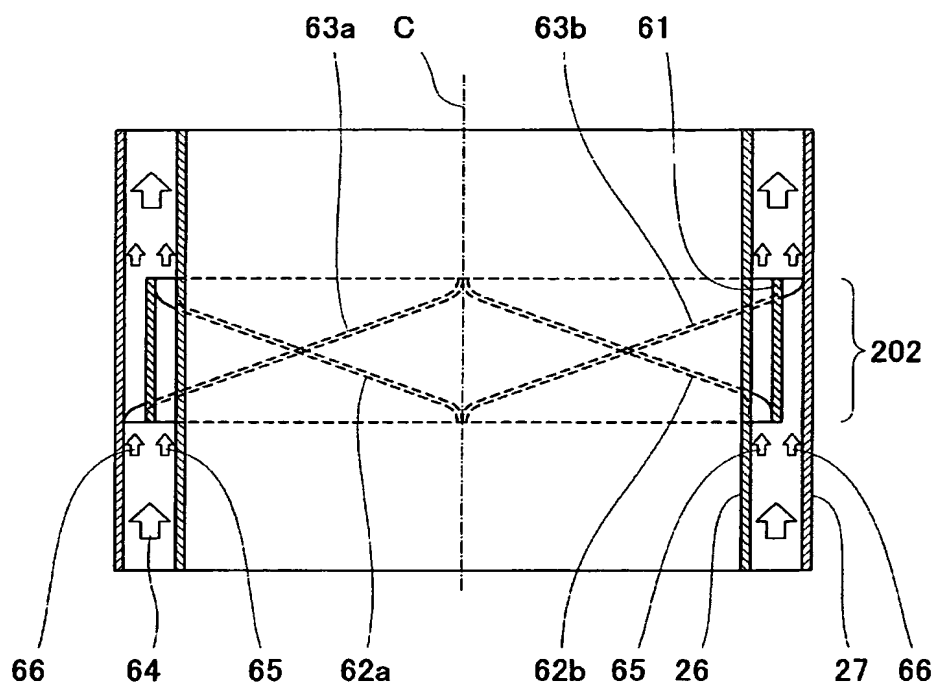


[図7]

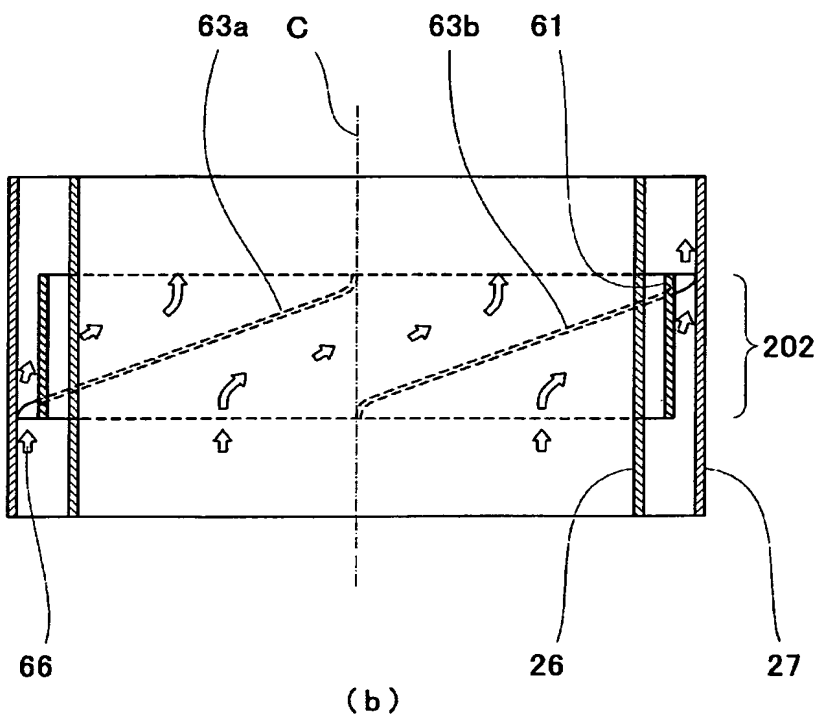
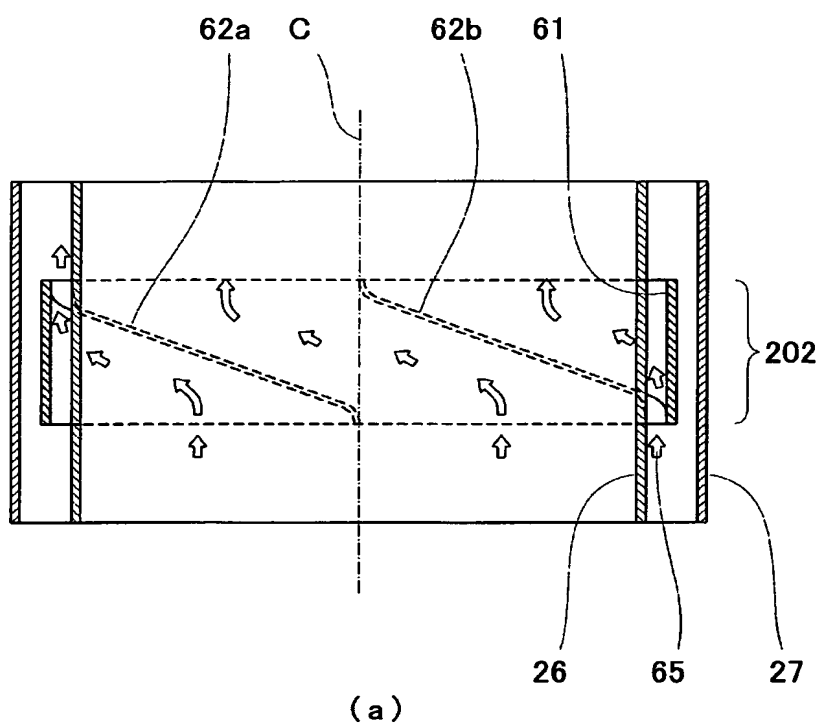




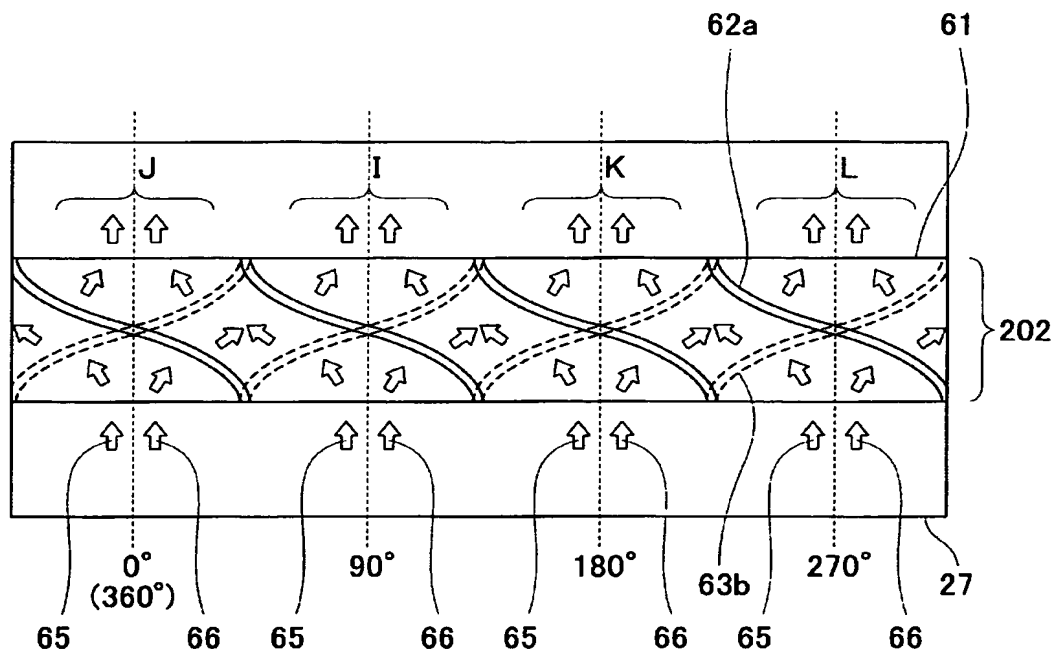
[図8]



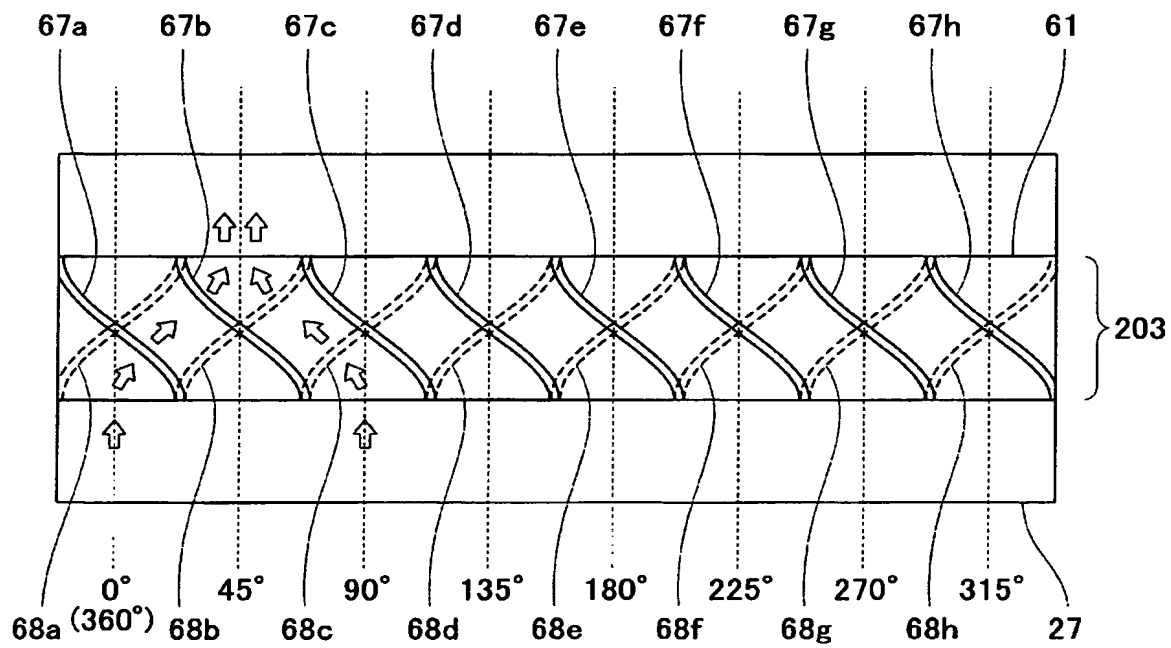
[図9]



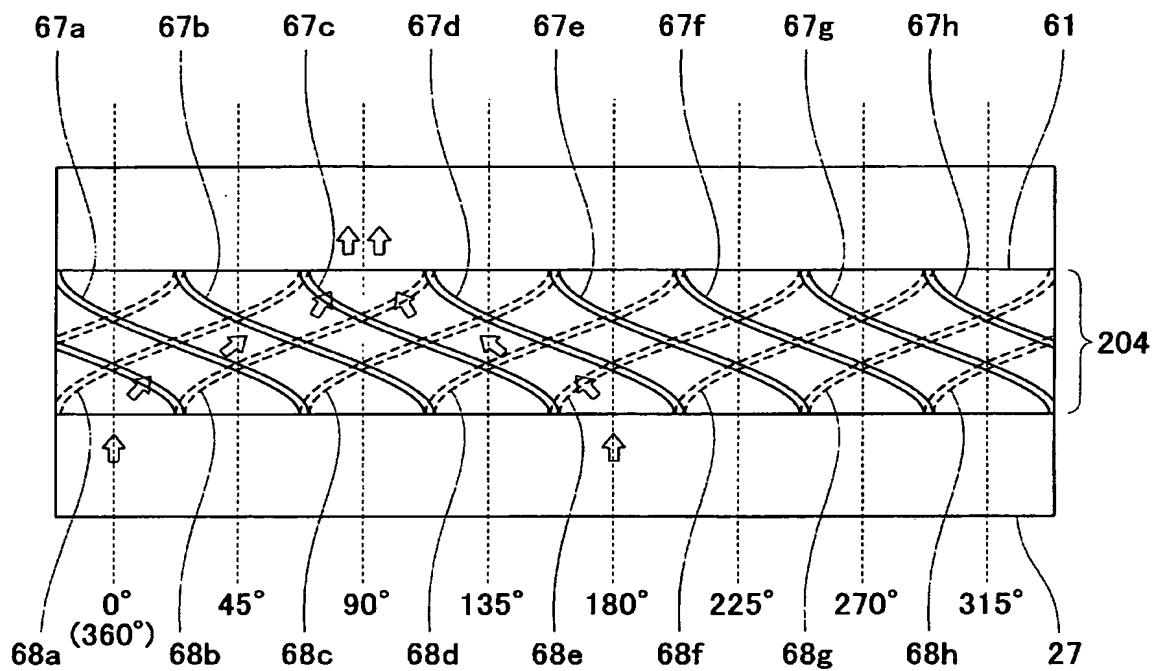
[図10]



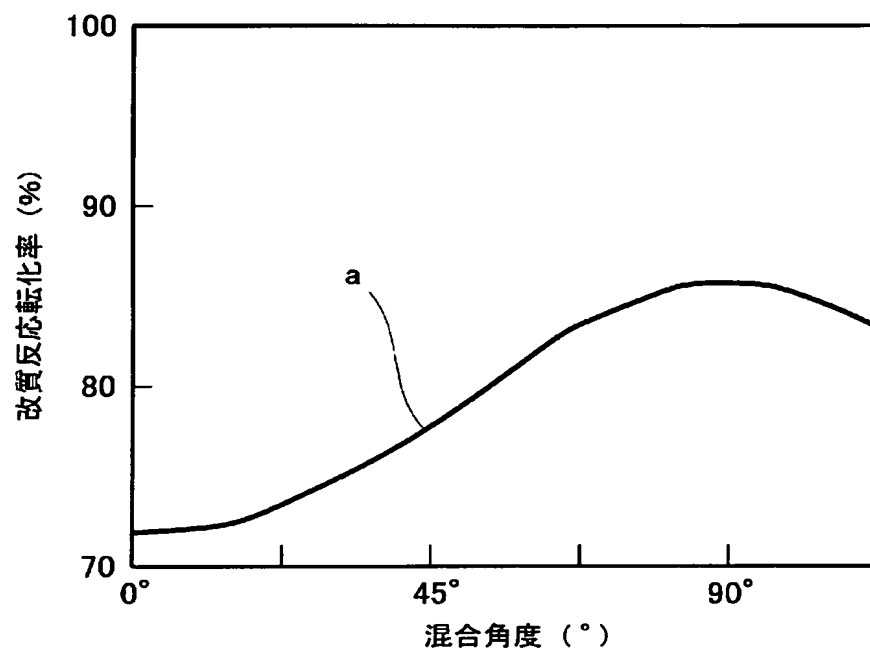
[図11]



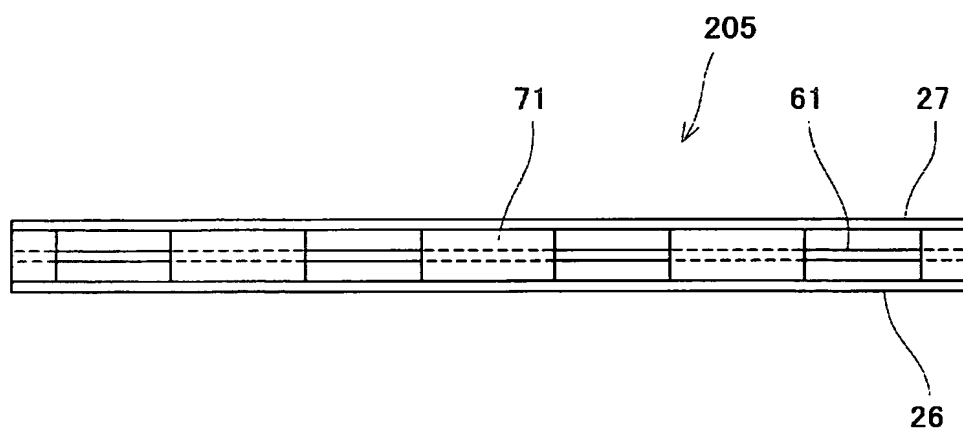
[図12]



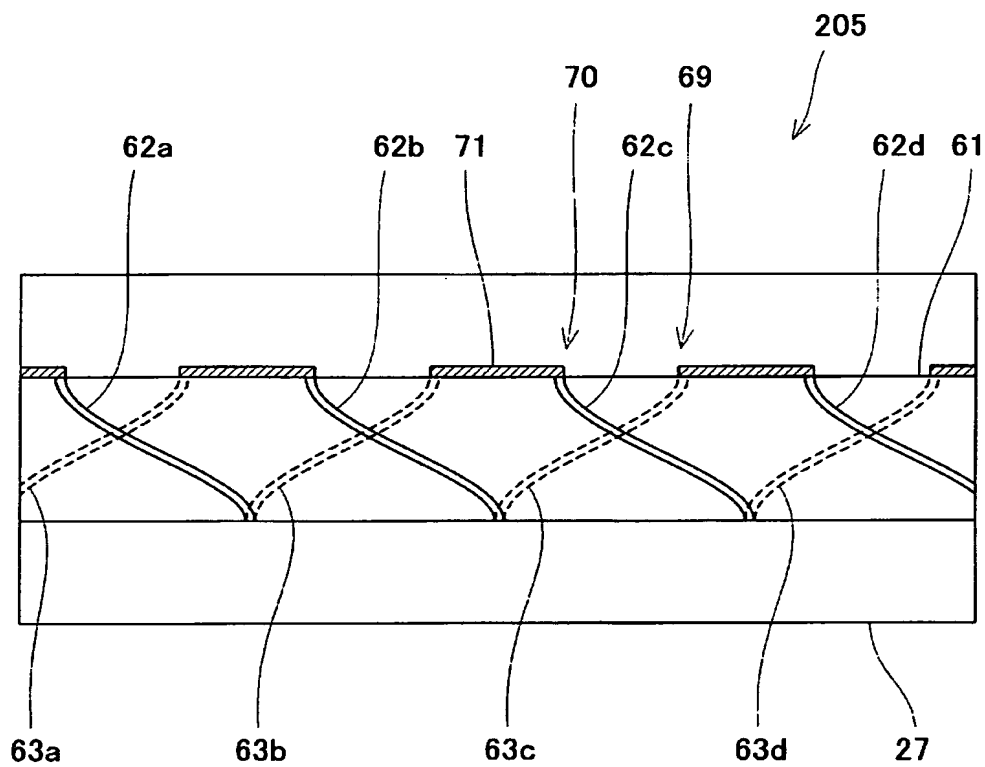
[図13]



[図14]

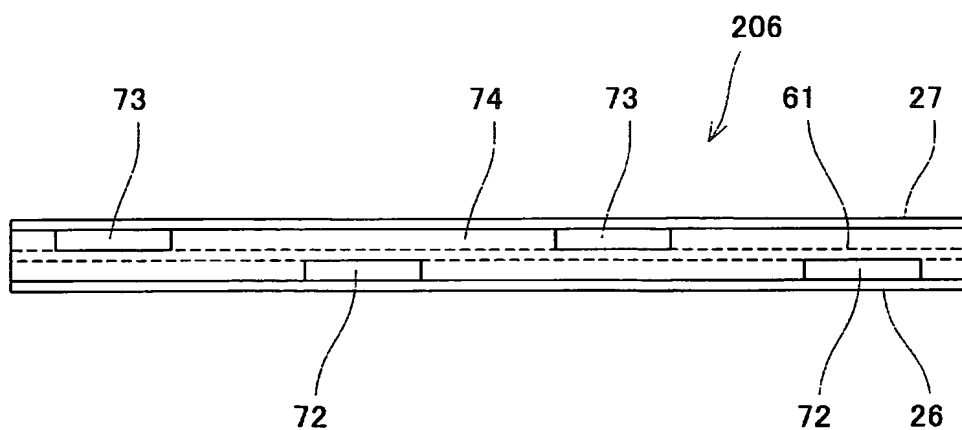


(a)

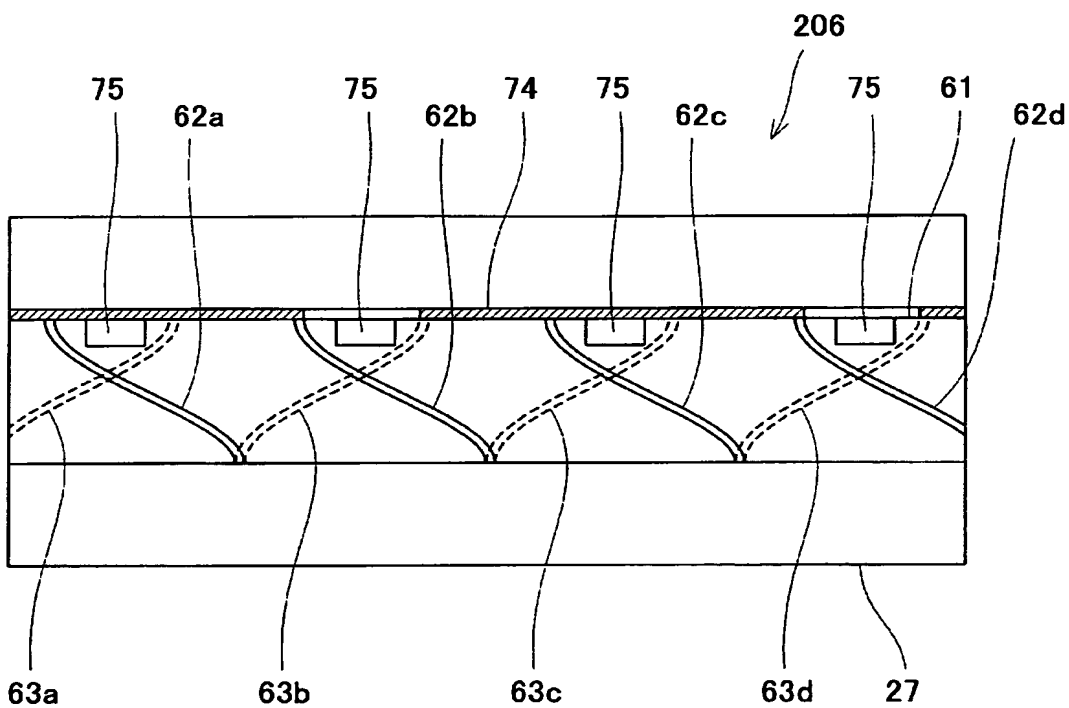


(b)

[[15]]

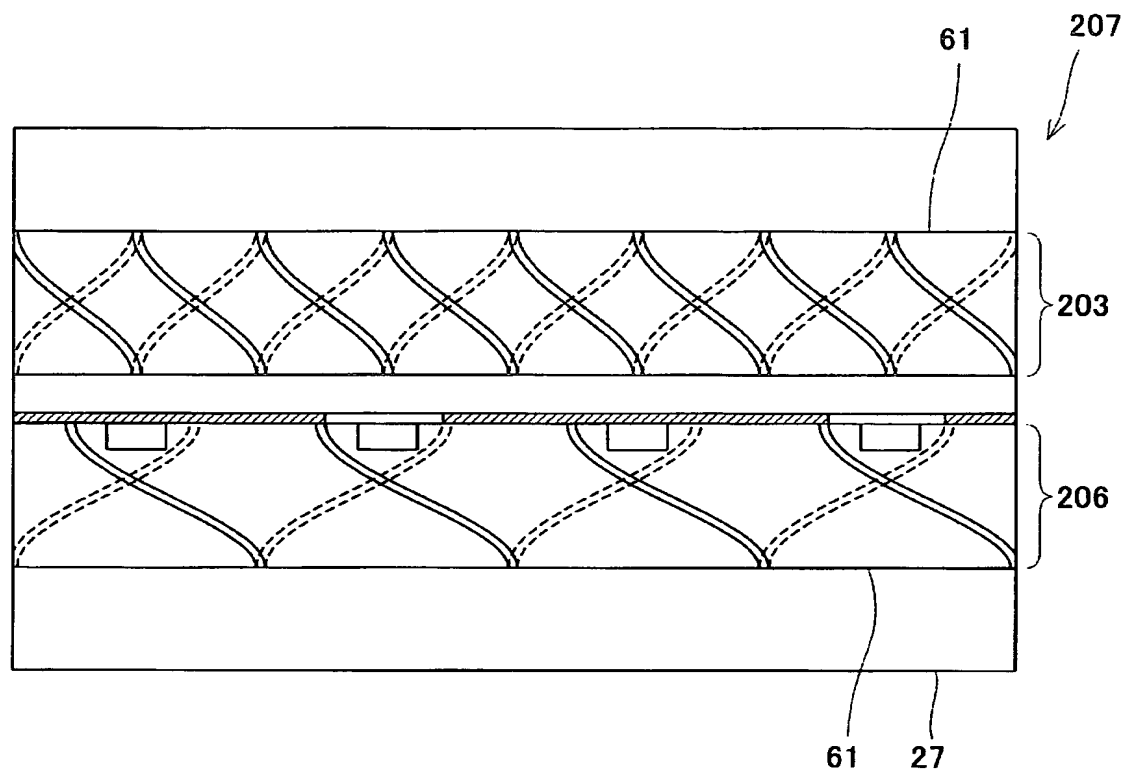


(a)

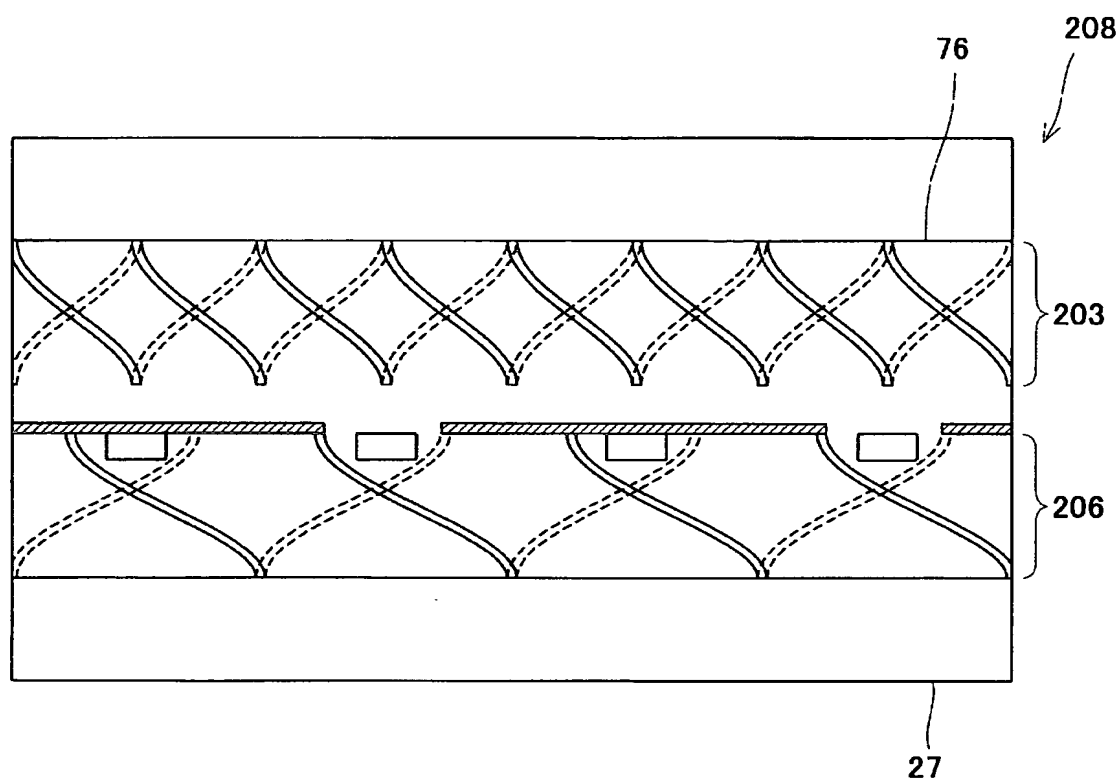


(b)

[図16]

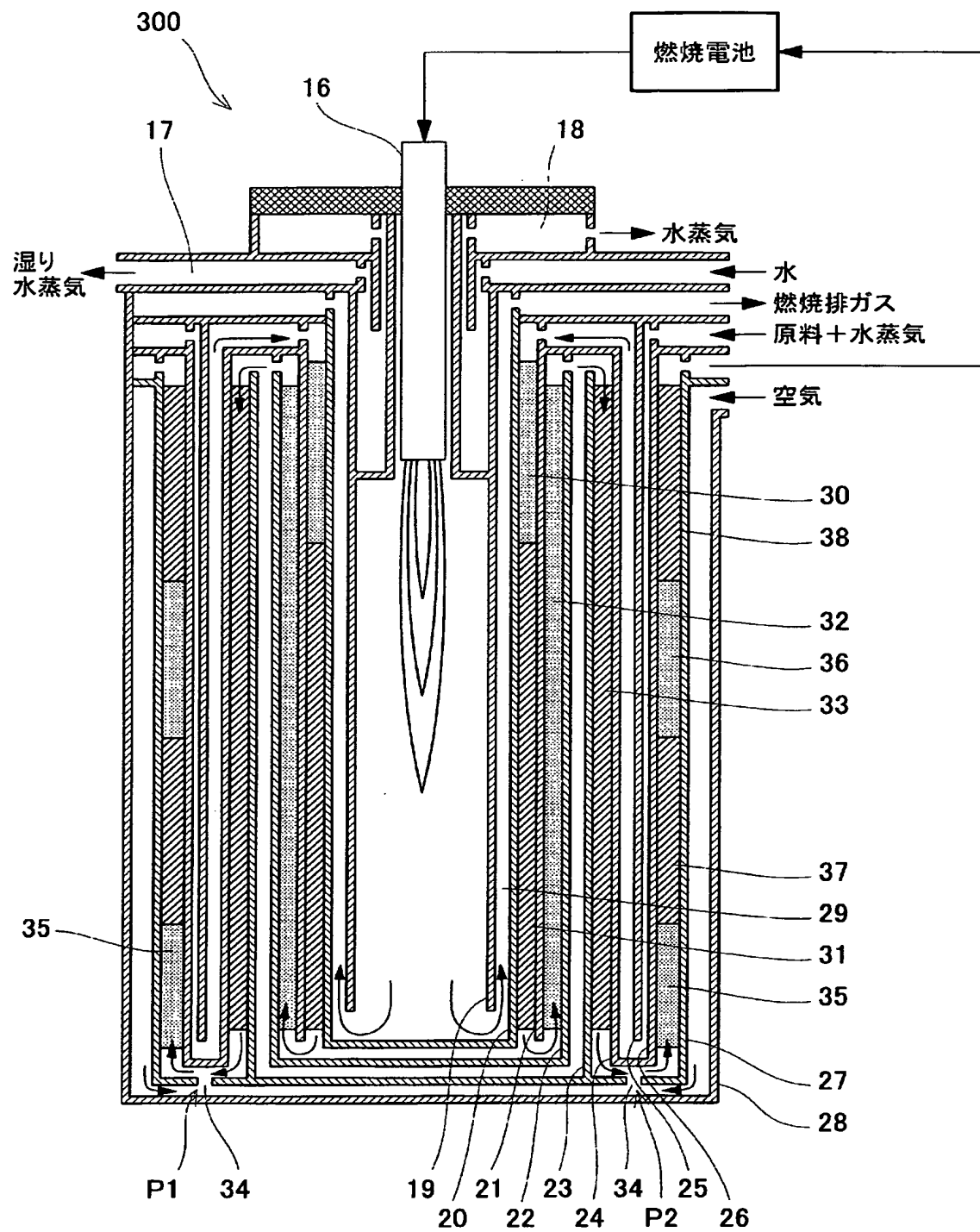


[図17]



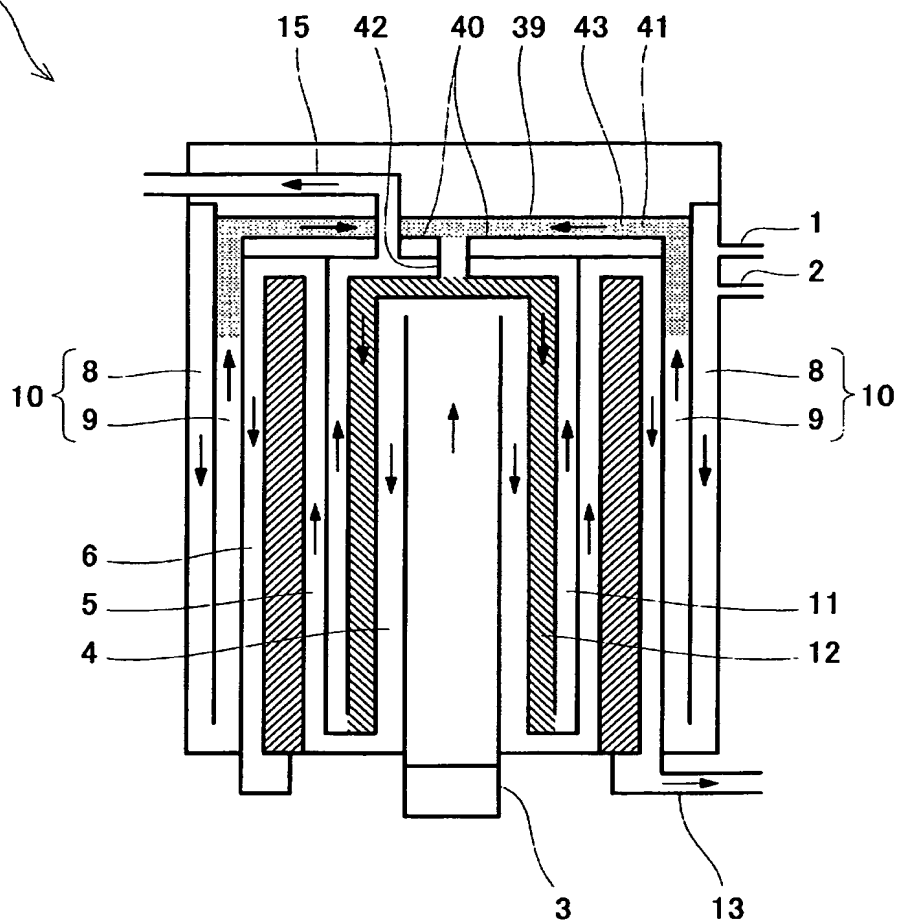


[図18]



[図19]

400



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/018411

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl<sup>7</sup> C01B3/38, H01M8/06

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
Int.Cl<sup>7</sup> C01B3/00-3/58, H01M8/06

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2005  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2005 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2003-80047 A (Kabushiki Kaisha Aruta), 18 March, 2003 (18.03.03), (Family: none)	1-13
A	JP 2003-226504 A (Aisin Seiki Co., Ltd.), 12 August, 2003 (12.08.03), (Family: none)	1-13
A	JP 2003-176104 A (Toyota Motor Corp.), 24 June, 2003 (24.06.03), (Family: none)	1-13
A	JP 2002-87803 A (Nissan Motor Co., Ltd.), 27 March, 2002 (27.03.02), (Family: none)	1-13

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
08 March, 2005 (08.03.05)

Date of mailing of the international search report  
29 March, 2005 (29.03.05)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/018411

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 7-33402 A (Hitachi, Ltd.), 03 February, 1995 (03.02.95), (Family: none)	1-13
A	JP 5-25538 B2 (Institut Francais du Petrole), 13 April, 1993 (13.04.93), & US 5037619 A & EP 0231706 A1	1-13
A	JP 4-180826 A (Noritake Co., Ltd.), 29 June, 1992 (29.06.92), (Family: none)	1-13
A	JP 4-9198 B2 (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), 19 February, 1992 (19.02.92), (Family: none)	1-13
A	JP 59-30128 B2 (Banquy, David Léon), 25 July, 1984 (25.07.84), & EP 0001946 A1 & WO 1979/000273 A1	1-13

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/J P 2004/018411

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C01B3/38, H01M8/06

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C01B3/00-3/58, H01M8/06

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2005年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2005年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	J P 2003-80047 A (株式会社アルタ) 2003. 03. 18 (ファミリーなし)	1-13
A	J P 2003-226504 A (アイシン精機株式会社) 2003. 08. 12 (ファミリーなし)	1-13
A	J P 2003-176104 A (トヨタ自動車株式会社) 2003. 06. 24 (ファミリーなし)	1-13

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

08. 03. 2005

国際調査報告の発送日

29. 3. 2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)  
 郵便番号100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

後 藤 政 博

4 G

8 9 2 6

電話番号 03-3581-1101 内線 6787

C (続き) 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 2002-87803 A (日産自動車株式会社) 2002. 03. 27 (ファミリーなし)	1-13
A	JP 7-33402 A (株式会社日立製作所) 1995. 02. 03 (ファミリーなし)	1-13
A	JP 5-25538 B2 (アステイイ フランセズ ト ペトロール) 1993. 04. 13 &US 5037619 A &EP 0231706 A1	1-13
A	JP 4-180826 A (株式会社ノリタケカンパニーリミテ ド) 1992. 06. 29 (ファミリーなし)	1-13
A	JP 4-9198 B2 (三菱重工業株式会社) 1992. 02. 19 (ファミリーなし)	1-13
A	JP 59-30128 B2 (ハンキ, デビッド・レオン) 1984. 07. 25 &EP 0001946 A1 &WO 1979/000273 A1	1-13